

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 2 月 5 日 (05.02.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/011467 A1

(51) 国際特許分類⁷: C07D 487/04, A01N 43/90

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/009615

(22) 国際出願日: 2003 年 7 月 29 日 (29.07.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願2002-219751 2002 年 7 月 29 日 (29.07.2002) JP

特願2002-229836 2002 年 8 月 7 日 (07.08.2002) JP

特願2002-249906 2002 年 8 月 29 日 (29.08.2002) JP

2 6 7 2 番地の 9 8 Kanagawa (JP). 渡邊 大 (WATANABE, Masaru) [JP/JP]; 〒243-0023 神奈川県 厚木市 戸田 2 3 8 5 番地 北興化学厚木寮 Kanagawa (JP). 若林 仁 (WAKABAYASHI, Hitoshi) [JP/JP]; 〒220-0072 神奈川県 横浜市 西区 浅間町三丁目 2 0 7-5 小川ビレッジ 1 0 2 Kanagawa (JP). 平松 基弘 (HIRA-MATSU, Motohiro) [JP/JP]; 〒243-0014 神奈川県 厚木市 旭町五丁目 2 0 番 3 号 Kanagawa (JP). 田原 智美 (TAHARA, Tomomi) [JP/JP]; 〒228-0803 神奈川県 相模原市 相模大野五丁目 1 1 番 2 9-1 0 5 号 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 川口 嘉之, 外 (KAWAGUCHI, Yoshiyuki et al.); 〒103-0004 東京都 中央区 東日本橋 3 丁目 4 番 1 0 号 アクロポリス 2 1 ビル 6 階 Tokyo (JP).

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 北興化学工業株式会社 (HOKKO CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒103-8341 東京都 中央区 日本橋本石町四丁目 4 番 2 0 号 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): JP, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

(72) 発明者; および

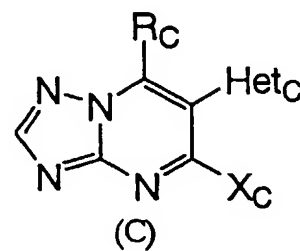
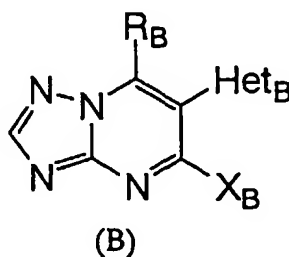
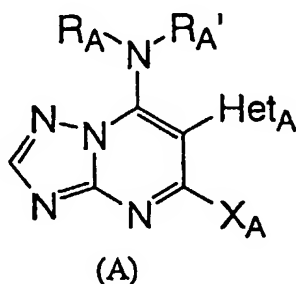
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 舩水 辰也 (MA-SUMIZU, Tatsuya) [JP/JP]; 〒253-0101 神奈川県 高座郡 寒川町 倉見 3 7 2 番地 4 Kanagawa (JP). 田地野 英宏 (TAJINO, Hidehiro) [JP/JP]; 〒243-0021 神奈川県 厚木市 岡田二丁目 1 6 番 2 0 号 コーポ本間 2 0 5 Kanagawa (JP). 村上 秀幸 (MURAKAMI, Hideyuki) [JP/JP]; 〒228-0024 神奈川県 座間市 入谷四丁目

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: TRIAZOLOPYRIMIDINE DERIVATIVES AND FUNGICIDES FOR AGRICULTURAL AND HORTICULTURAL USE

(54) 発明の名称: トリアゾロピリミジン誘導体および農園芸用殺菌剤



(57) Abstract: Fungicides for agricultural and horticultural use which contain novel triazolo-pyrimidine derivatives represented by the general formula (A), (B), or (C) and which exhibit high disease control activity and do not cause chemical damage: (A) (B) (C) wherein Het_{A-C} is a heteroatom-containing five- or six-membered ring; X_{A-C} is halogeno, cyano, or the like; R_A and R_{A'} may be the same or different from each other and are each C₁₋₁₀ alkyl, C₂₋₁₀ alkenyl, C₂₋₁₀ alkynyl, or phenyl; R_B is an optionally substituted nitrogenous heterocycle attached at the nitrogen atom; and R_C is C₁₋₁₀ alkyl, C₂₋₁₀ alkenyl, C₂₋₁₀ alkynyl, C₃₋₈ cycloalkyl, C₄₋₁₀ cycloalkylalkyl, or aralkyl.

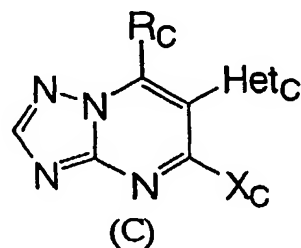
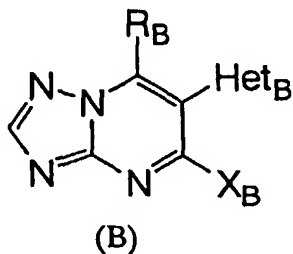
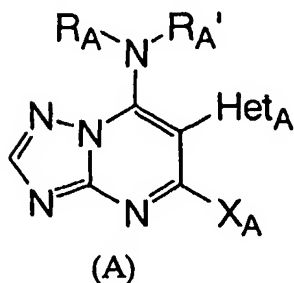
[続葉有]

WO 2004/011467 A1



(57) 要約:

一般式 (A)、(B) または (C)



[式中、Het_{A~C}は、ヘテロ元素を含む5員環または6員環を示し、X_{A~C}は、ハロゲン原子、シアノ基などを示し、R_AおよびR_{A'}は、同一または互いに異なっている、C1~C10アルキル基、C2~C10アルケニル基、C2~C10アルキニル基またはフェニル基を示し、R_Bは、窒素原子で結合している、置換されていてもよい含窒素複素環を示し、R_Cは、C1~C10アルキル基、C2~C10アルケニル基、C2~C10アルキニル基、C3~C8シクロアルキル基、C4~C10シクロアルキルアルキル基またはアラルキル基を示す。]

で表される新規なトリアゾロピリミジン誘導体を含む農園芸用殺菌剤であって、高い病害防除活性を有し、薬害のない農園芸用殺菌剤。

明細書

トリアゾロピリミジン誘導体および農園芸用殺菌剤

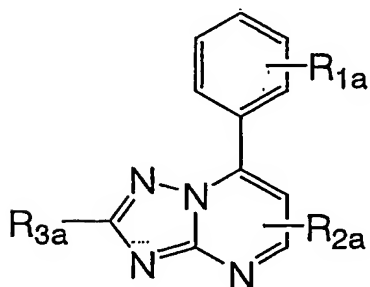
技術分野

本発明は、新規なトリアゾロピリミジン誘導体および当該誘導体を活性成分として含有することを特徴とする農園芸用殺菌剤に関する。

背景技術

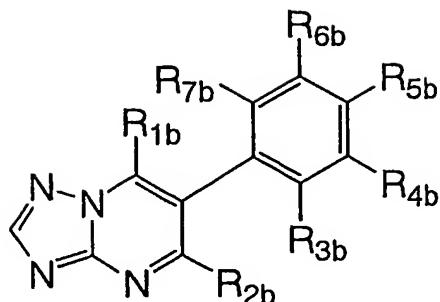
これまで、本発明に化学構造上類似のトリアゾロピリミジン誘導体は下記に示すとおり、幾つか知られている。

(1) 特開平05-262773号公報には、下記一般式で示されるトリアゾロピリミジンが除草活性を有することが記載されている。



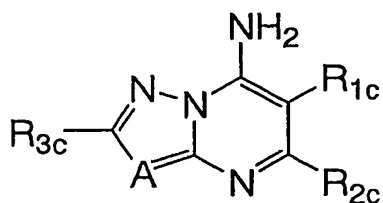
(式中、 R_{1a} は水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ハロアルキル基、ハロアルコキシ基、ハロアルキルチオ基、シアノ基を表し、 R_{2a} はアルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基を表し、 R_{3a} はアルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ハロアルキル基、ハロアルコキシ基、ハロアルキルチオ基を表す。)

(2) 国際公開特許WO99/41255号公報には、下記一般式で示されるトリアゾロピリミジン誘導体が殺菌活性を有することが記載されている。



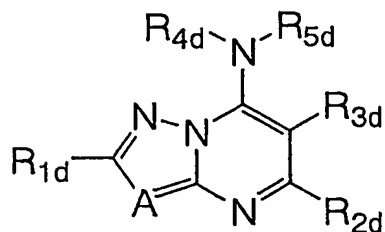
(式中、 R_{1b} が置換されてもよいアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルカジエニル基、アリール基、シクロアルキル基もしくはシクロアルケニル基を表し、 R_{2b} が水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、アルコキシ基などを表し、 R_{3b} 、 R_{4b} 、 R_{5b} 、 R_{6b} および R_{7b} が、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、ニトロ基もしくはシアノ基を表す。)

(3) 欧州特許第215382号公報には、下記一般式で表されるトリアゾロピリミジン誘導体が殺菌活性を有することが記載されている。



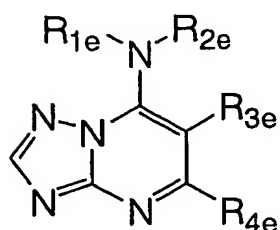
(式中、 R_{1c} は無置換または置換アルキル基、無置換または置換アラルキル基、無置換または置換アリール基などを表し、 R_{2c} および R_{3c} は水素原子、アルキル基、アリール基を表し、 A は窒素原子、 CR_{4c} を表し、 R_{4c} は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基を表す。)

(4) 国際公開特許WO 00/44754号公報には、下記一般式で表されるトリアゾロピリミジン誘導体が人体への脂肪蓄積を抑制する活性を有することが記載されている。



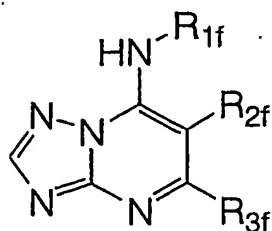
(式中、 R_{1d} は水素原子、アルキル基、アルケニル基などを表し、 R_{2d} および R_{3d} は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルケニル基などを表し、 R_{4d} は水素原子、アルキル基などを表し、 R_{5d} はアルキル基、アルケニル基などを表し、Aは窒素原子、CHなどを表す。)

(5) 米国特許第5593996号明細書には、下記一般式で表されるトリアゾロピリミジン誘導体が殺菌活性を有することが記載されている。



(式中、 R_{1e} はアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、複素環式基などを表し、 R_{2e} は水素原子、アルキル基を表し、あるいは、 R_{1e} および R_{2e} は隣接する窒素原子と一緒になって複素環式基を表し、 R_{3e} はアリール基を表し、 R_{4e} は水素原子、ハロゲン原子、アルキルアミノ基を表す。)

(6) 国際公開特許WO 01/96341号公報には、下記一般式で表されるトリアゾロピリミジン誘導体を原料として用いたトリアゾロピリミジン-7-イリデン誘導体を製造する方法が記載されている。しかしながら、下記一般式で表されるトリアゾロピリミジン誘導体のうち、 R_{2f} が複素環である誘導体は、具体例は開示されていない。



(式中、 R_{1f} は水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、ハロアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基、ナフチル基、複素環式基などを表し、 R_{2f} はフェニル基、シクロアルキル基、複素環式基を

表し、 R_{3f} はハロゲン原子、アミノ基、アルコキシ基、ハロアルコキシ基、アルキルアミノ基などを表す。)

しかしながら、上記文献に記載の化合物は、後期試験例に示されるとおり、農園芸分野の病害に対し殺菌活性が不十分であり、特に治療効果はほとんどなく、また、作物に薬害を与えたりすることから、実用上満足しがたい。従って、従来の薬剤とは異なる新規な化合物を含む農園芸用殺菌剤が要望されている。

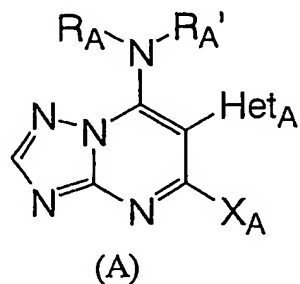
発明の開示

本発明は、上記の要望に合致した新規な化合物およびそれを用いた農園芸用殺菌剤を提供することを目的とするものである。

本発明者らは、上記した目的を達成するため、多くの化合物を合成し、それらの有用性について鋭意検討した。その結果、特定の構造を有する新規なトリアゾロピリミジン誘導体が農園芸用殺菌剤として幅広い防除スペクトラムと高い防除効果を有し、病害の種類によっては、予防および治療の両方の効果を兼ね備えた高い病害防除活性を有することを見出した。

すなわち、本発明は以下のとおりである。

(1) 一般式 (A)



[式中、

Het_A は、ヘテロ元素を含む5員環または6員環を示し、これらの環はハロゲン原子、C1～C6アルキル基、C1～C6アルコキシ基、

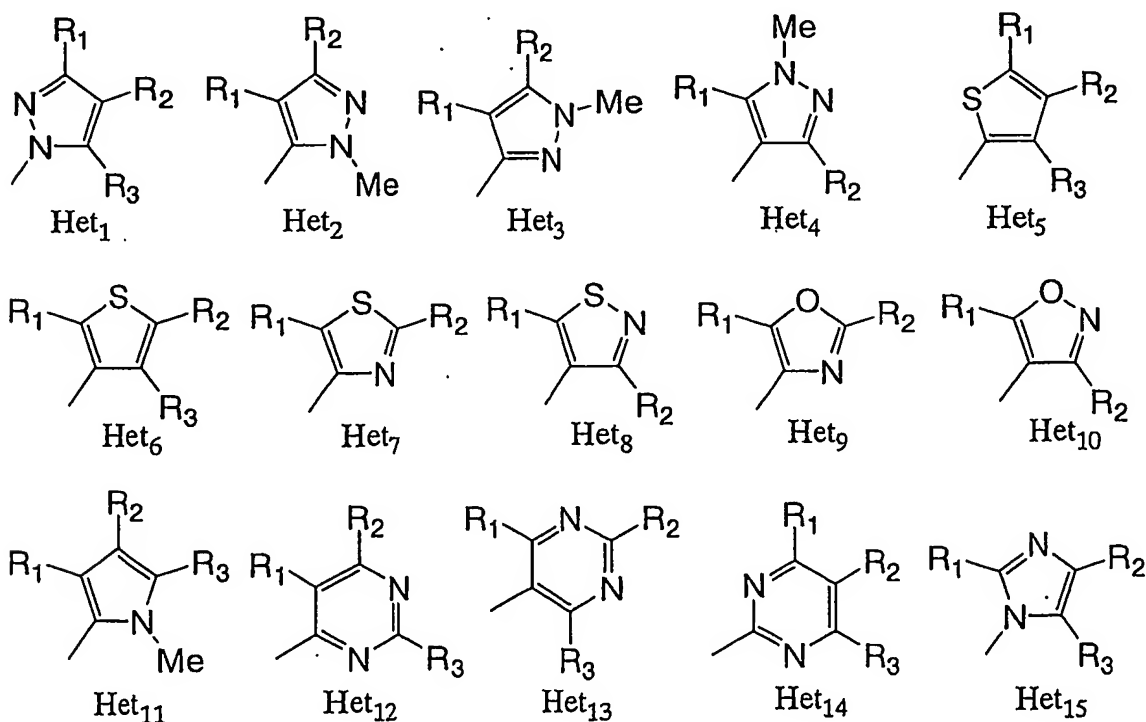
C 1 ~ C 6 ハロアルキル基またはC 2 ~ C 6 アルコシアルキル基で置換されていてもよく、

X_Aは、ハロゲン原子、シアノ基、C 1 ~ C 6 アルコキシ基、C 1 ~ C 6 アルキルチオ基、C 1 ~ C 6 アルキルスルフィニル基、C 1 ~ C 6 アルキルスルホニル基、C 1 ~ C 6 アルキルアミノ基またはC 1 ~ C 6 アルコシカルボニル基を示し、かつ

R_AおよびR_A'は、同一または互いに異なっている、C 1 ~ C 10 アルキル基、C 2 ~ C 10 アルケニル基、C 2 ~ C 10 アルキニル基またはフェニル基（当該アルキル基、アルケニル基、アルキニル基およびフェニル基は、ハロゲン原子、C 1 ~ C 6 アルキル基、C 1 ~ C 6 ハロアルキル基、C 1 ~ C 6 アルコキシ基、C 1 ~ C 6 アルキルチオ基、C 1 ~ C 6 アルコシカルボニル基およびカルボキシ基からなる群から選ばれた1または複数の基で置換されていてもよい）を示す。]

で表されるトリアゾロピリミジン誘導体。

(2) 前記Het_Aは、以下の一般式Het₁ ~ Het₁₅で表される基



(ここで R_1 、 R_2 および R_3 は、同一または異なっている、水素原子、 $C1 \sim C6$ アルキル基、 $C1 \sim C6$ アルコキシ基、 $C1 \sim C6$ ハロアルキル基、またはハロゲン原子を表す)のいずれかの基を示し、

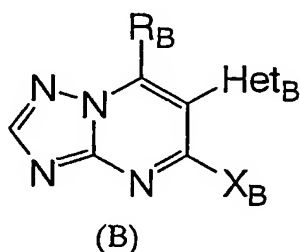
前記 X_A は、ハロゲン原子を示し、かつ

前記 R_A および R_A' は、同一または互いに異なっている、 $C1 \sim C10$ アルキル基、 $C2 \sim C10$ アルケニル基または $C2 \sim C10$ アルキニル基(当該アルキル基、アルケニル基およびアルキニル基は、ハロゲン原子、 $C1 \sim C6$ アルキル基または $C1 \sim C6$ ハロアルキル基で置換されていてもよい)を示す

ことを特徴とする、(1)に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

(3) 前記 Het_A は、前記 Het_1 、 Het_6 または Het_{12} で表される基であることを特徴とする、(2)に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

(4) 一般式(B)



[式中、

Het_B は、ヘテロ元素を含む5員環または6員環を示し、これらはハロゲン原子、 $C1 \sim C6$ アルキル基、 $C1 \sim C6$ アルコキシ基、 $C1 \sim C6$ ハロアルキル基または $C2 \sim C6$ アルコキシアルキル基で置換されていてもよく、

X_B は、ハロゲン原子、シアノ基、 $C1 \sim C6$ アルコキシ基、 $C1 \sim C6$ アルキルチオ基、 $C1 \sim C6$ アルキルスルフィニル基、 $C1 \sim C6$ アルキルスルホニル基、 $C1 \sim C6$ アルキルアミノ基または $C1 \sim C6$ アルコキシカルボニル基を示し、かつ

R_B は、窒素原子で結合している、置換されていてもよい含窒素複素環を示す。]

で表されるトリアゾロピリミジン誘導体。

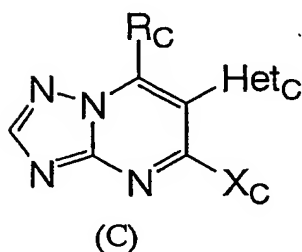
(5) 前記 Het_B は、上記の一般式 $Het_1 \sim Het_{15}$ で示される基のいずれかの基を示し、かつ

前記 X_B は、ハロゲン原子を示す

ことを特徴とする、(4) に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

(6) 前記 Het_B は、前記 Het_1 、 Het_6 または Het_{12} で表される基であることを特徴とする、(5) に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

(7) 一般式 (C)



[式中、

Het_C は、ヘテロ元素を含む 5 員環または 6 員環を示し、これらの 5 員環または 6 員環はハロゲン原子、C 1 ~ C 6 アルキル基、C 1 ~ C 6 アルコキシ基、C 1 ~ C 6 ハロアルキル基および C 2 ~ C 6 アルコシアルキル基からなる群から選ばれた基によって置換されていてもよく、

X_C は、ハロゲン原子、シアノ基、C 1 ~ C 6 アルコキシ基または C 1 ~ C 6 アルキルチオ基を示し、かつ

R_C は、C 1 ~ C 10 アルキル基、C 2 ~ C 10 アルケニル基、C 2 ~ C 10 アルキニル基、C 3 ~ C 8 シクロアルキル基、C 4 ~ C 10 シクロアルキルアルキル基またはアラルキル基を示し、当該アラルキル基のベンゼン環はハロゲン原子、C 1 ~ C 6 アルキル基、C 1 ~ C 6 アルコキシ基または C 1 ~ C 6 アルキルチオ基により置換されていてもよ

い。]

で表される、トリアゾロピリミジン誘導体。

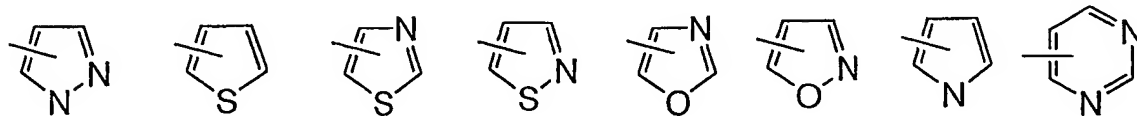
(8) 前記 Het_c は前記一般式 Het_1 で表される基であることを特徴とする、(7) に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

(9) (1) ~ (8) のいずれかに記載のトリアゾロピリミジン誘導体を活性成分として含有することを特徴とする、農園芸用殺菌剤。

前記一般式 (A)、一般式 (B)、一般式 (C) または一般式 Het_1 ~ Het_{15} 上の基であるアルキル基、またはハロアルキル基、アルコキシ基、ハロアルコキシ基、アルキルチオ基、アルコキシカルボニル基もしくはアルキルアミノ基のアルキル部分は、直鎖状であっても、分岐鎖状であってもよい。

前記一般式 (A) において Het_A または前記一般式 (B) において Het_B は、ヘテロ元素を環内に含む任意の 5 員環または 6 員環であるが、好ましくは、前記一般式 Het_1 ~ Het_{15} のいずれかで表される環であり、さらに好ましくは、前記 Het_1 、 Het_8 または Het_{12} で表される環である。

また、前記一般式 (C) において Het_c は、ヘテロ元素を環内に含む任意の 5 員環または 6 員環であるが、好ましくは次の一般式で示されるいずれかの環であり、さらに好ましくは、前記 Het_1 で表される環である。



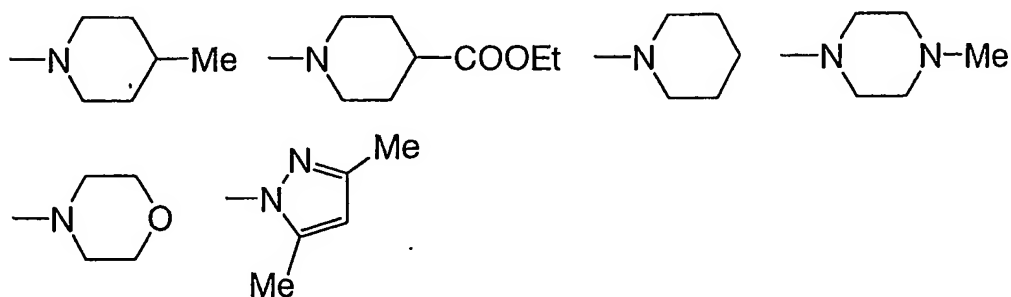
Het_A 、 Het_B もしくは Het_c 上の、または Het_1 ~ Het_{15} 上の R_1 、 R_2 もしくは R_3 であるハロゲン原子としては、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子およびフッ素原子が挙げられ、C1 ~ C6 アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*t*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*n*-

ベンチル基、イソアミル基およびn-ヘシキル基などが挙げられ、C1～C6アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、sec-ブトキシ基、t-ブトキシ基、イソブトキシ基およびイソヘキシルオキシ基などが挙げられ、C1～C6ハロアルキル基としては、トリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリクロロメチル基、ジクロロメチル基、フルオロメチル基、クロロメチル基、ヨードメチル基、ブロモメチル基、ペンタフルオロエチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、およびペンタクロロエチル基などが挙げられ、C2～C6アルコシアルキル基としては、メトキシメチル基、エトキシメチル基、n-プロポキシメチル基、イソプロポキシエチル基、n-ブトキシメチル基、sec-ブトキシメチル基、t-ブトキシメチル基、イソブトキシメチル基、n-ブトキシエチル基などが挙げられる。

前記一般式(A)において R_A または R_A' であるC1～C10アルキル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、イソアミル基、n-ヘシキル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、n-ノニル基およびn-デシル基などが挙げられ、C2～C10アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、1-イソブテニル基、3-メチル-2-ブテニル基、1-ペンテニル基、1-ヘキセニル基および1-オクテニル基などが挙げられ、C2～C10アルキニル基としては、エチニル基、2-プロピニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、5-ペンチニル基、3, 3-ジメチル-1-ブチニル基、4-メチル-1-ペンチニル基および7-オクチニル基などが挙げられる。また、 R_A および R_A' であるアルキル基、アルケニル基、アルキニル基またはフェニル基上の1または複数の水素と置換しているハロゲン原子としては、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子およびフッ素原子が挙げられ、C1～C6アルキル基としては、

メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*t*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*n*-ペンチル基、イソアミル基および*n*-ヘシキル基などが挙げられ、C1～C6ハロアルキル基としては、トリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリクロロメチル基、ジクロロメチル基、フルオロメチル基、クロロメチル基、ヨードメチル基、プロモメチル基、ペンタフルオロエチル基およびペンタクロロエチル基などが挙げられ、C1～C6アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*t*-ブトキシ基、イソブトキシ基およびイソヘキシルオキシ基などが挙げられ、C1～C6アルキルチオ基としては、メチルチオ基、エチルチオ基、*n*-プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、*n*-ブチルチオ基、*sec*-ブチルチオ基、*t*-ブチルチオ基、イソブチルチオ基およびイソヘシキルチオ基などが挙げられ、C1～C6アルコキシカルボニル基としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、*n*-プロポキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニル基、*n*-ブトキシカルボニル基、*sec*-ブトキシカルボニル基、*t*-ブトキシカルボニル基、イソブトキシカルボニル基およびイソヘキシルオキシカルボニル基などが挙げられる。

前記一般式(B)においてR_Bは、トリアゾロピリミジン環と窒素原子で結合している、置換されていてもよい任意の含窒素複素環であるが、好ましくは、下記の含窒素複素環が挙げられる。



一般式(C)において、R_CであるC1～C10アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、

イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、イソアミル基、n-ヘシキル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、n-ノニル基およびn-デシル基などが挙げられる。C₂~C₁₀アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、1-イソブテニル基、3-メチル-2-ブテニル基、1-ペンテニル基、1-ヘキセニル基および1-オクテニル基などが挙げられる。C₂~C₁₀のアルキニル基としては、エチニル基、2-プロピニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、5-ペンチニル基、3,3-ジメチル-1-ブチニル基、4-メチル-1-ペンチニル基および7-オクチニル基などが挙げられる。C₃~C₈シクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプロチル基およびシクロオクチル基などが挙げられる。C₄~C₁₀シクロアルキルアルキル基としては、シクロプロピルメチル基、シクロプロピルエチル基、シクロブチルメチル基、シクロペンチルメチル基、シクロヘキシルメチル基およびシクロヘキシルエチル基などが挙げられる。アラルキル基としては、ベンジル基、 α -フェネチル基、 β -フェネチル基、3-フェニルプロピル基および4-フェニルブチル基などが挙げられる。

一般式(C)においてR₆である、ベンゼン環にハロゲン原子の置換したアラルキル基としては、2-クロロベンジル基、3-クロロベンジル基、4-クロロベンジル基、2-クロロ-6-フルオロベンジル基、2,6-ジクロロベンジル基、2,3-ジクロロベンジル基、2,4-ジクロロベンジル基、3,4-ジクロロベンジル基、3-ブロモベンジル基、2-フルオロベンジル基、3-フルオロベンジル基、4-フルオロベンジル基、2,6-ジフルオロベンジル基、2,5-ジフルオロベンジル基、3,4-ジフルオロベンジル基、3,5-ジフルオロベンジル基、4-クロロ- α -フェネチル基および4-クロロ- β -フェネチル基などが挙げられる。ベンゼン環にC₁~C₆アルキル基で置換したアラルキル基としては、2-メチルベンジル基、3-メチルベンジル基、

4-メチルベンジル基、2, 4-ジメチルベンジル基、3, 4-ジメチルベンジル基、2, 4, 6-トリメチルベンジル基、4-エチルベンジル基、4-イソプロピルベンジル基、2, 4, 6-トリイソプロピルベンジル基、p-ト-ブチルベンジル基および3, 5-ジ-ト-ブチルベンジル基などが挙げられる。ベンゼン環にC1~C6アルコキシ基で置換したアラルキル基としては、2-メトキシベンジル基、3-メトキシベンジル基、3, 4-ジメトキシベンジル基、3, 5-ジメトキシベンジル基、3-メトキシ-4-エトキシベンジル基、4-エトキシベンジル基、4-n-プロポキシベンジル基、4-イソプロポキシベンジル基、4-n-ブトキシベンジル基、4-sec-ブトキシベンジル基、4-イソブトキシベンジル基、4-t-ブトキシベンジル基および4-イソヘキシルオキシベンジル基などが挙げられる。ベンゼン環にC1~C6アルキルチオ基で置換したアラルキル基としては、2-メチルチオベンジル基、3-メチルチオベンジル基、4-メチルチオベンジル基、4-エチルチオベンジル基、4-n-プロピルチオベンジル基、4-イソプロピルチオベンジル基、4-n-ブチルチオベンジル基、4-sec-ブチルチオベンジル基、4-イソブチルチオベンジル基、4-t-ブチルチオベンジル基および4-イソヘキシルチオベンジル基などが挙げられる。

一般式(A)において X_A 、一般式(B)において X_B または一般式(C)において X_C であるハロゲン原子としては、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子およびフッ素原子が挙げられる。C1~C6アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、sec-ブトキシ基、t-ブトキシ基、イソブトキシ基、n-ペンチルオキシ基およびイソヘキシルオキシ基などが挙げられる。C1~C6アルキルチオ基としては、メチルチオ基、エチルチオ基、n-プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、n-ブチルチオ基、sec-ブチルチオ基、t-ブチルチオ基、イソブチルチオ基およびイソヘキ

シルチオ基などが挙げられる。

一般式 (A) において X_A または一般式 (B) において X_B である C 1 ~ C 6 アルキルスルフィニル基としては、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、*n*-プロピルスルフィニル基、イソプロピルスルフィニル基、*n*-ブチルスルフィニル基、*sec*-ブチルスルフィニル基、*tert*-ブチルスルフィニル基、イソブチルスルフィニル基およびイソヘキシルスルフィニル基などが挙げられる。C 1 ~ C 6 アルキルスルホニル基としては、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、*n*-プロピルスルホニル基、イソプロピルスルホニル基、*n*-ブチルスルホニル基、*sec*-ブチルスルホニル基、*tert*-ブチルスルホニル基、イソブチルスルホニル基およびイソヘキシルスルホニル基などが挙げられる。C 1 ~ C 6 アルキルアミノ基は、モノアルキルアミノ基であっても、ジアルキルアミノ基であってもよく、アルキル部位の例としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、イソヘキシルなどが挙げられる。C 1 ~ C 6 アルコキシカルボニル基の、アルコキシ部位としては、メトキシ、エトキシ、*n*-プロポキシ、イソプロポキシ、*n*-ブトキシ、*sec*-ブトキシ、*tert*-ブトキシ、イソブトキシ、*n*-ペンチルオキシおよびイソヘキシルオキシなどが挙げられる。

一般式 (A) で表される本発明に係るトリアゾロピリミジン誘導体の具体例を表 1 ~ 表 10 に、一般式 (B) で表される本発明に係るトリアゾロピリミジン誘導体の具体例を表 11 ~ 表 22 に、一般式 (C) で表される本発明に係るトリアゾロピリミジン誘導体の具体例を表 23 ~ 表 25 に示した。さらに、これらの誘導体の中間体となりうる化合物 (下記するスキーム 1 において一般式 (1) で表される化合物) の具体例を表 26 に示した。

なお、表中で「Me」はメチル基を、「Et」はエチル基を、「nPr」は*n*-プロピル基を、「iPr」はイソプロピル基を、「nBu」は*n*-ブチル基を、「iBu」はイソブチル基を、「nPen」は*n*-ペンチル

基を表す。表中の化合物N o. は、下記の実施例および試験例においても参照される。

表1


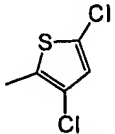
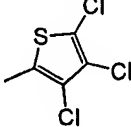
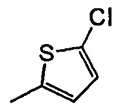
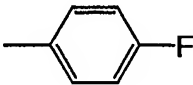
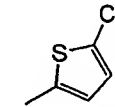
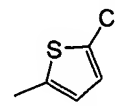
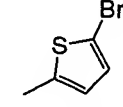
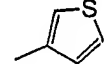
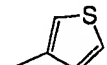
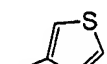
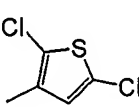
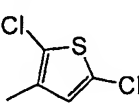
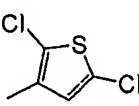
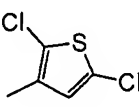
化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-1		Me	Et	Cl	mp 205-207°C
A-2		Me	iBu	Cl	
A-3		Me	iBu	Cl	
A-4		Et		Cl	
A-5		Et	iBu	Cl	mp 162-164°C
A-6		Me	CH ₂ CF ₃	Cl	
A-7		Me	iBu	Br	
A-8		Me	iBu	Cl	
A-9		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH=CHCH ₃	Cl	mp 162-163°C
A-10		Et	CH ₂ C(Me)=CH ₂	Cl	
A-11		Me	iBu	Cl	
A-12		Me	CH ₂ CO ₂ H	Cl	
A-13		Me	CH ₂ CO ₂ Me	Cl	mp 164-165°C
A-14		Me	Me	Cl	mp 182-183°C

表2

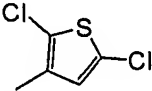
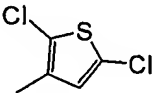
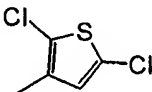
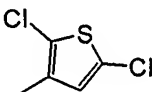
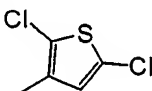
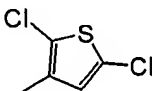
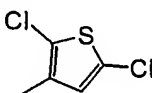
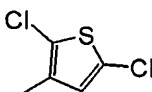
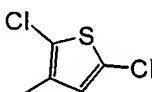
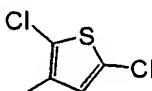
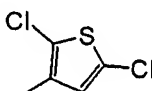
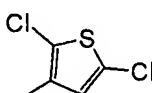
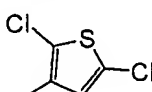
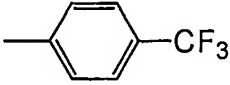
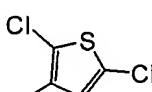
化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-15		Me	CH(Et)CO ₂ H	Cl	mp 125-129°C
A-16		Me	CH(Et)CO ₂ Me	Cl	mp 108-110°C
A-17		Me	CH(Et)CO ₂ iPr	Cl	mp 141-142°C
A-18		Me	CH(Et)CO ₂ (CH ₂) ₃ CH=CH ₂	Cl	mp 88-90°C
A-19		Et	CH ₂ CH ₂ OMe	Cl	
A-20		Et	CH ₂ CH=CCl ₂	Cl	mp 112-114°C
A-21		Et	CH ₂ CH=CHCH ₃	Cl	mp 140-142°C
A-22		Et	CH ₂ C(Me)=CH ₂	Cl	mp 126-128°C
A-23		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH=CHCH ₃	Cl	mp 103-105°C
A-24		Me	CH ₂ C≡CH	Cl	
A-25		CH ₂ CF ₃	iBu	Cl	mp 60-64°C
A-26		CH ₂ C(Me)=CH ₂	CH ₂ C(Me)=CH ₂	Cl	mp 146-149°C
A-27		nPr		Cl	
A-28		nBu	nBu	Br	

表3

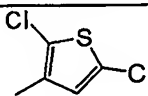
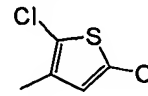
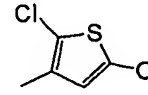
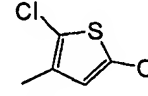
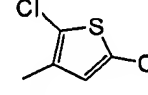
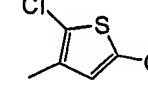
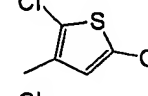
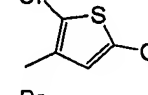
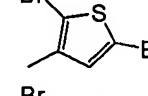
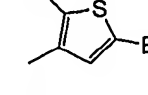
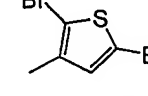
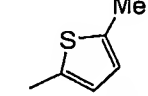
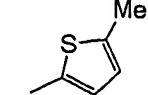
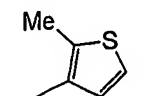
化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-29		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	SMe	
A-30		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	SOMe	
A-31		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	SO ₂ Me	
A-32		Me	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	CN	
A-33		Me	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	OEt	
A-34		Me	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	NHEt	
A-35		Me	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	NEt ₂	
A-36		Me	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	CO ₂ Et	
A-37		Me	iBu	Cl	
A-38		CH ₂ CF ₃	nPr	Br	
A-39		nBu	nPr	Br	
A-40		Et	Et	Cl	
A-41		iBu	CH ₂ C≡CCH ₃	Cl	
A-42		iBu	iBu	Cl	

表4

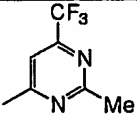
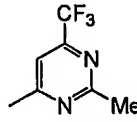
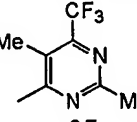


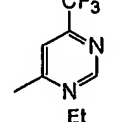
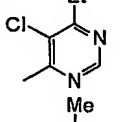
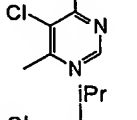
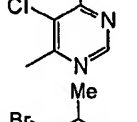
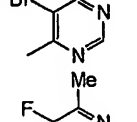
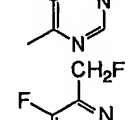
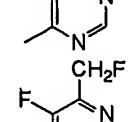
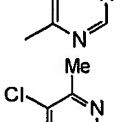
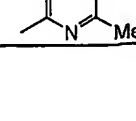
化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-43		Me	iBu	Cl	mp 156-157°C
A-44		nPr	nPr	Cl	mp 168-169°C
A-45		Me	iBu	Cl	
A-46		Et	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	CN	
A-47		Me	-CH(Et)CO ₂ iPr	CN	
A-48		Me	iPr	OiPr	
A-49		Me	iBu	Cl	mp 106-107°C
A-50		Me	iBu	Cl	oil
A-51		Et	CH ₂ CH=CHCH ₃	CN	
A-52		Me	iBu	Cl	oil
A-53		Et	CH ₂ CH ₂ OMe	NHMe	
A-54		Me	iBu	Cl	
A-55		Et	-CH(Et)CO ₂ Me	Cl	
A-56		Me	iBu	Cl	

表5

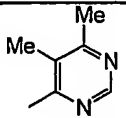
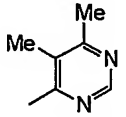
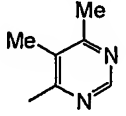
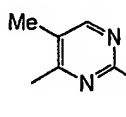
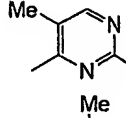
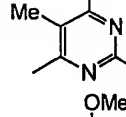
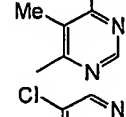
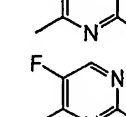
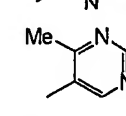
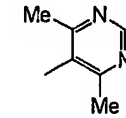
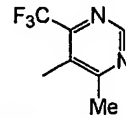
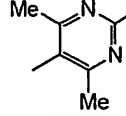
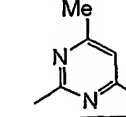

化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-57		Me	iBu	Cl	mp 161-163°C
A-58		Me	iBu	CN	
A-59		Me	iBu	CO ₂ Me	
A-60		Me	iBu	Cl	mp 129-130°C
A-61		iBu	iBu	Cl	
A-62		Me	iBu	Cl	
A-63		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH=CHCH ₃	Cl	mp 153-154°C
A-64		Me	iBu	Cl	
A-65		nBu	nPr	Br	
A-66		nPr	nPr	Cl	
A-67		Me	iBu	CN	
A-68		Me	iBu	Cl	
A-69		Me	iBu	Cl	
A-70		Me	iBu	Cl	

表6

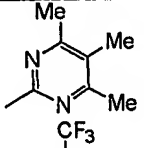

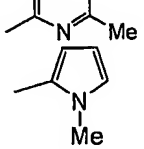
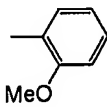
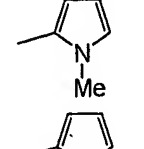
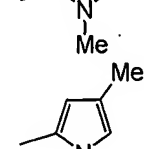
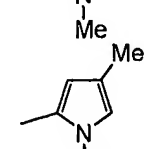
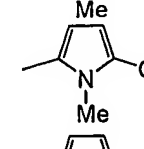
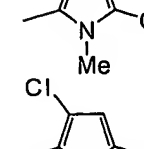
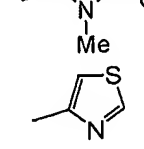
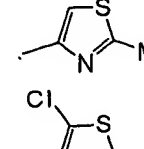
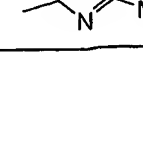
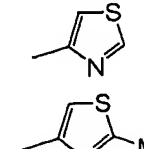
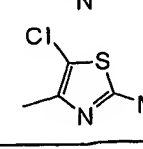

化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-71		Et	CH(Me)CO ₂ Me	Cl	
A-72		Et	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	CN	
A-73		Me		Cl	
A-74		Me	iBu	Cl	mp 135-136°C
A-75		Me	CH ₂ C≡CH	Cl	
A-76		Me	CH ₂ CF ₂ CF ₃	Cl	
A-77		Me	iBu	Cl	mp 168-170°C
A-78		Me	iBu	CN	
A-79		Me	iBu	Cl	mp 174-175°C
A-80		Et	CH ₂ C(Me)=CH ₂	Cl	
A-81		nPr	nPr	Br	
A-82		Et	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	CN	
A-83		Me	iBu	Cl	mp 136-137°C
A-84		Me	iBu	Cl	mp 131-132°C

表7

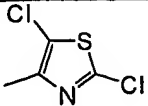
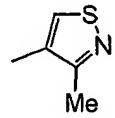
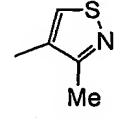
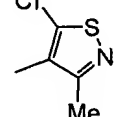
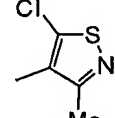
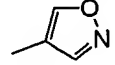
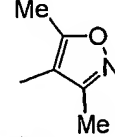
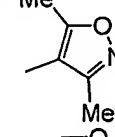
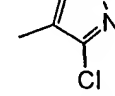
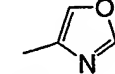
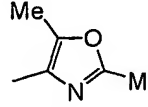
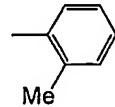
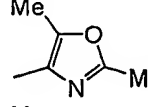
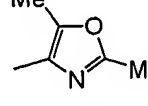
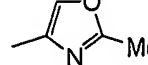
化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-85		Et	Et	Cl	mp 154~156°C
A-86		Me	iBu	Cl	
A-87		Et	CH ₂ CH ₂ SMe	Cl	
A-88		nPr	nPr	Cl	
A-89		CH ₂ CF ₃	iBu	Cl	
A-90		Me	iBu	Cl	
A-91		Et	Et	OMe	
A-92		Me	iBu	Cl	
A-93		CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	Cl	
A-94		Me	iBu	Cl	
A-95		Me		Cl	
A-96		CH ₂ C(Me)=CH ₂	CH ₂ C(Me)=CH ₂	Cl	
A-97		Me	CH ₂ CF ₃	CN	
A-98		nPr	nPr	Cl	

表8

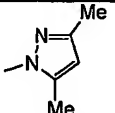
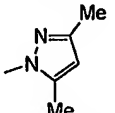
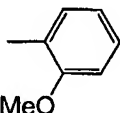
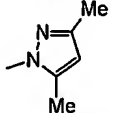
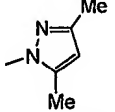
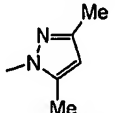
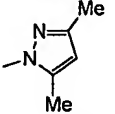
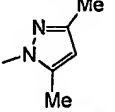
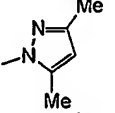
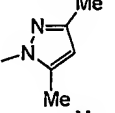
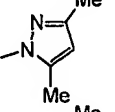
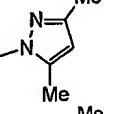
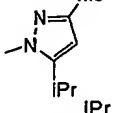
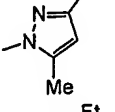
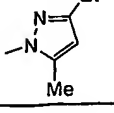
化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-99		Me	iBu	Cl	mp 136-137°C
A-100		Me		Cl	
A-101		Me	CH ₂ CF ₃	Cl	
A-102		Me	iBu	SMe	mp 146-148°C
A-103		Me	iBu	SOMe	
A-104		Me	iBu	SO ₂ Me	mp 176-178°C
A-105		Me	iBu	CN	mp 175-176°C
A-106		Me	iBu	OMe	
A-107		Me	iBu	NHMe	
A-108		Me	iBu	NMe ₂	
A-109		Me	iBu	CO ₂ Me	
A-110		Me	iBu	Cl	mp 131-132°C
A-110		Me	iBu	Cl	mp 89-90°C
A-112		Me	iBu	Cl	mp 86-90°C

表9

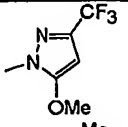
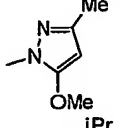
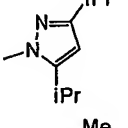
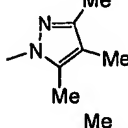
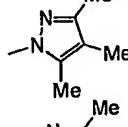
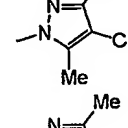
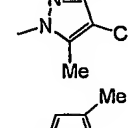
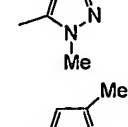
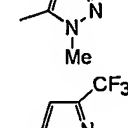
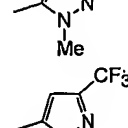
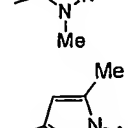
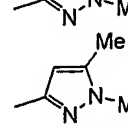
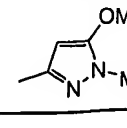

化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-113		Me	iBu	Cl	mp 167-168°C
A-114		nPr	nPr	Cl	
A-115		Et	CH ₂ CH=CHCH ₃	Cl	
A-116		Me	iBu	Cl	
A-117		Me	iBu	CN	
A-118		CH ₂ CF ₃	nPr	Br	
A-119		Et	CH ₂ CH ₂ OMe	Cl	
A-120		Me	iBu	Cl	
A-121		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH(Me)CH ₂ CHMe ₂	Cl	
A-122		Me	CH ₂ C≡CH	Cl	
A-123		nPr	iBu	Cl	
A-124		Me	iBu	Cl	mp 146-148°C
A-125		Et	CH ₂ CH=CCl ₂	Cl	
A-126		Me	iBu	Cl	

表10

化合物No.	置換基				物性値
	Het _A	R _A	R _A '	X _A	
A-127		Et	nPen	Cl	mp 144–145°C
A-128		Me	iBu	Cl	
A-129		nBu	nBu	Cl	
A-130		Me	iBu	Cl	mp 203–204°C
A-131		Me	iBu	CN	
A-132		Me	iBu	Cl	
A-133		Me	CH ₂ C≡CH	Cl	oil
A-134		Me	iBu	Cl	
A-135		Et	—CH(Me)CO ₂ Me	Cl	
A-136		Me	iBu	CO ₂ Me	
A-137		CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH=CHCH ₃	Cl	
A-138		Me	iBu	Cl	
A-139		Me	CH ₂ C≡CH	Cl	
A-140		iBu	iBu	Cl	

表11


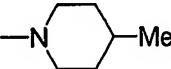

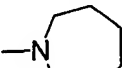

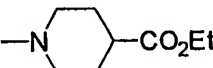

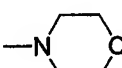
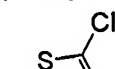
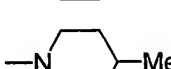
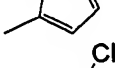
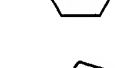
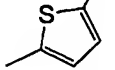

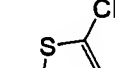
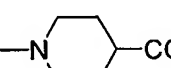
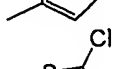
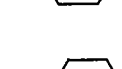
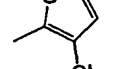
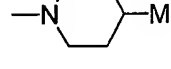
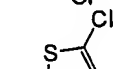
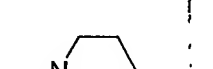
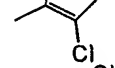
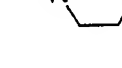
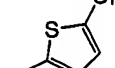
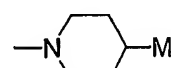
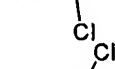
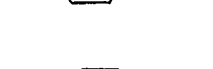
化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-1			Cl	mp 180-182°C
B-2			Cl	
B-3			Cl	
B-4			Cl	
B-5			Cl	mp 215-216°C
B-6			CN	
B-7			Cl	
B-8			Cl	
B-9			Cl	mp 216-219°C
B-10			CN	
B-11			Cl	mp 169-170°C
B-12			Cl	
B-13			Cl	mp 183-184°C
B-14			Cl	

表12


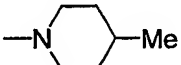

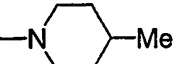

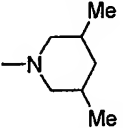

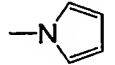
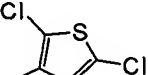
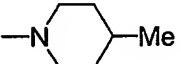
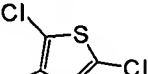
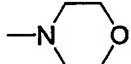
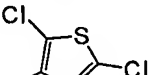
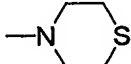
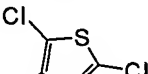
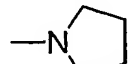
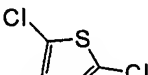
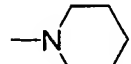
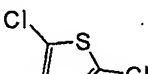
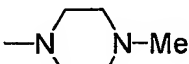
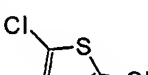
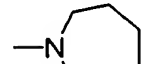
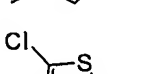

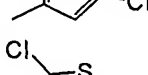
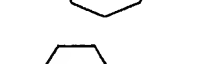
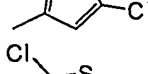
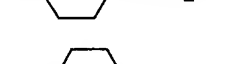
化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-15			Cl	mp 161-162°C
B-16			Cl	
B-17			Cl	
B-18			CN	mp 176-178°C
B-19			Cl	
B-20			Cl	
B-21			Cl	
B-22			Cl	
B-23			Cl	
B-24			Cl	
B-25			Cl	
B-26			Cl	
B-27			Cl	mp 235°C(dec)
B-28			Cl	

表13

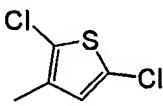
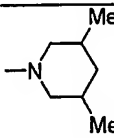
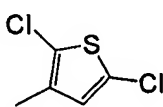
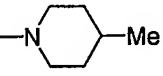
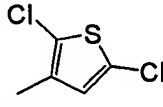
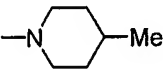
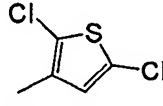
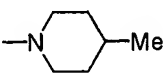
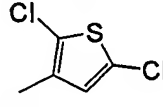
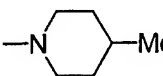
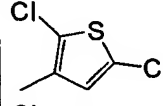
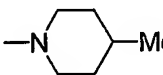
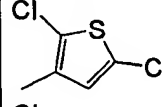
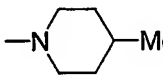
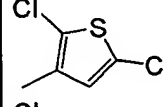
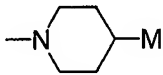
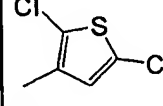
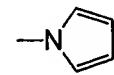
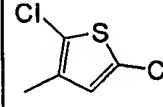
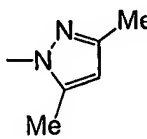
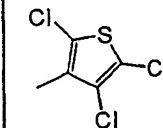
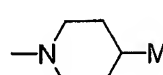
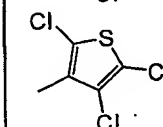
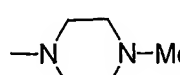
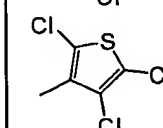
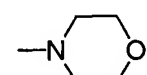
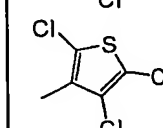
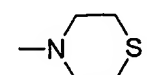
化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-29			Cl	mp 188-189°C
B-30			SMe	mp 197-198°C
B-31			SO ₂ Me	mp 230°C(dec)
B-32			CN	mp 186-187°C
B-33			NHMe	mp 220-222°C
B-34			OMe	mp 201-203°C
B-35			NMe ₂	mp 180-181°C
B-36			CO ₂ Me	mp 172°C(dec)
B-37			Cl	mp 161-162°C
B-38			Cl	mp 193-194°C
B-39			Cl	oil
B-40			Cl	
B-41			CN	
B-42			OMe	

表14

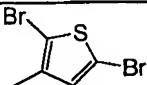
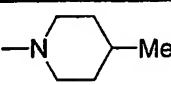
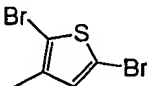
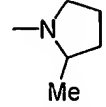
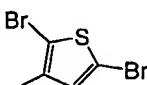
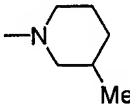
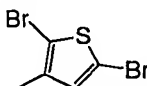
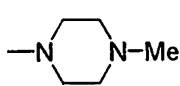
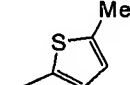
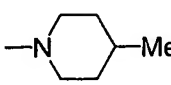
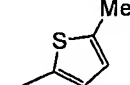
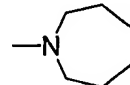
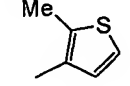
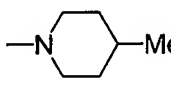
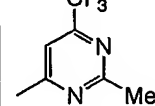
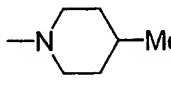
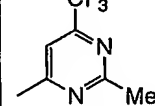
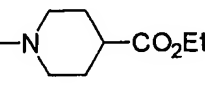
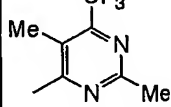
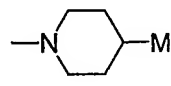
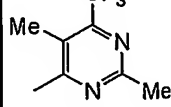
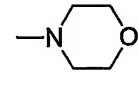
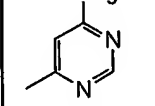
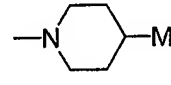
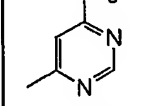
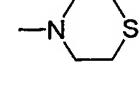
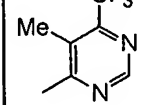
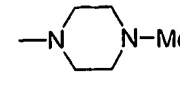
化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-43			Cl	mp 166-168°C
B-44			Br	
B-45			Br	
B-46			CN	
B-47			Cl	
B-48			Cl	mp 195-197°C
B-49			Cl	
B-50			Cl	
B-51			CN	
B-52			Cl	
B-53			Cl	mp 237-238°C
B-54			Cl	
B-55			OMe	
B-56			Cl	

表15

化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-57			Cl	mp 142-143°C
B-58			CN	
B-59			CN	
B-60			Cl	mp 140-141°C
B-61			Cl	oil
B-62			Cl	oil
B-63			Cl	oil
B-64			Cl	mp 164-165°C
B-65			NHMe	
B-66			Cl	mp 176-177°C
B-67			Cl	
B-68			Cl	mp 200-201°C
B-69			OMe	
B-70			Cl	mp 191-193°C

表16

化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-71			SMe	oil
B-72			Cl	
B-73			Cl	
B-74			Cl	mp 128-132°C
B-75			CO ₂ Me	
B-76			Cl	
B-77			CN	mp 145-148°C
B-78			Cl	
B-79			Cl	
B-80			Cl	mp 150-153°C
B-81			Cl	
B-82			Cl	
B-83			Br	mp 87-91°C
B-84			Cl	

表17

化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-85			NHMe	mp 183–185°C
B-86			OEt	
B-87			Cl	
B-88			Br	
B-89			Cl	mp 163–165°C
B-90			Cl	
B-91			SOMe	
B-92			CN	
B-93			Cl	mp 176–177°C
B-94			CN	
B-95			Cl	mp 161–163°C
B-96			SMe	
B-97			Cl	mp 158–159°C
B-98			Cl	

表18

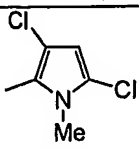
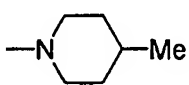
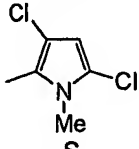
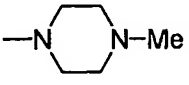
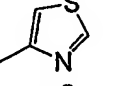
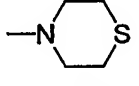
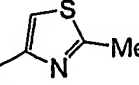
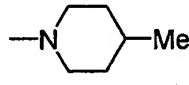
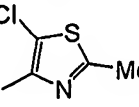
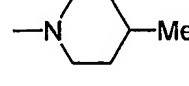
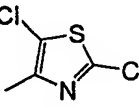
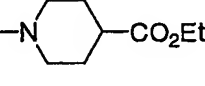
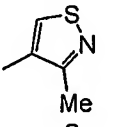
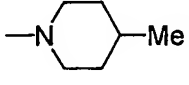
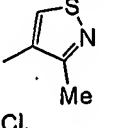
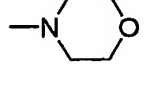
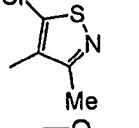
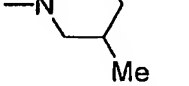
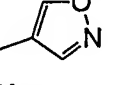
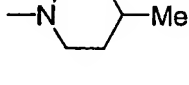
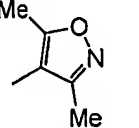
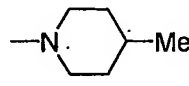
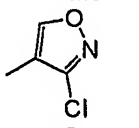
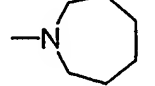
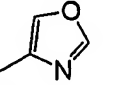
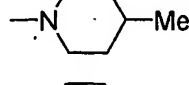
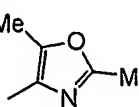
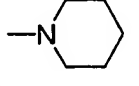
化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-99			Cl	mp 185-187°C
B-100			Cl	
B-101			NMe ₂	mp 185-186°C
B-102			Cl	
B-103			Cl	mp 164°C(dec)
B-104			CN	
B-105			Cl	mp 155-157°C
B-106			Cl	
B-107			Cl	
B-108			Cl	
B-109			Cl	mp 153-155°C
B-110			Cl	
B-111			Cl	
B-112			Cl	

表19

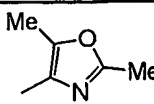
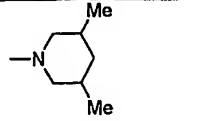
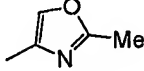
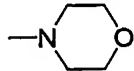
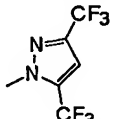
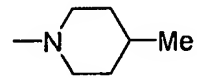
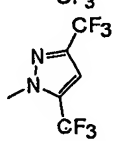
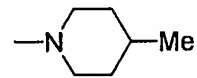
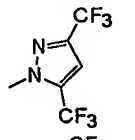
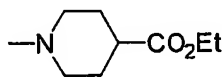
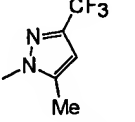
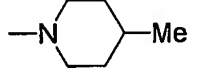
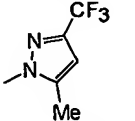
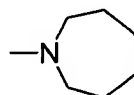
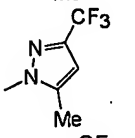
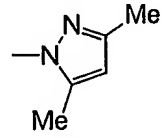
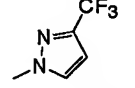
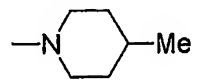
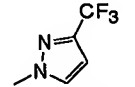
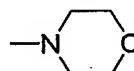
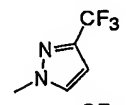
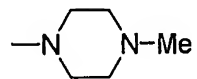
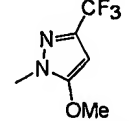
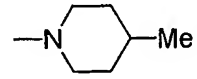
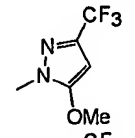
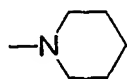
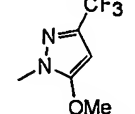
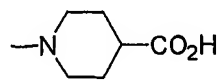
化合物No.	置換基			物性値		
	Het _B	R _B	X _B			
B-113			Cl	mp 142-144°C		
B-114			Br			
B-115			Cl			
B-116			CN			
B-117			Cl			
B-118			Cl		mp 147-149°C	
B-119			NMe ₂			
B-120			OMe		mp 209-210°C	
B-121			Cl			
B-122			Br			
B-123			SMe			
B-124			Cl			mp 126-128°C
B-125			CN			
B-126			Cl			

表20

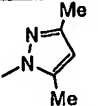
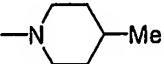
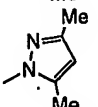
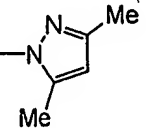
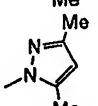
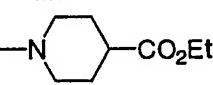
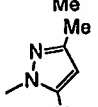

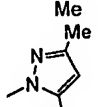

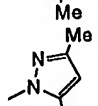
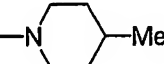
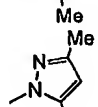
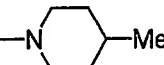
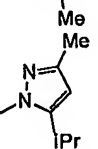
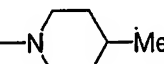
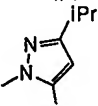
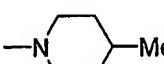
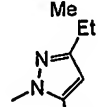

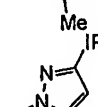
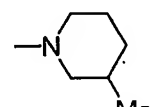
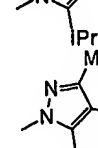

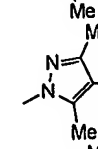
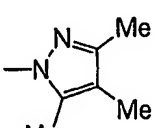
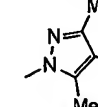

化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-127			Cl	mp 138-140°C
B-128			Cl	mp 135-137°C
B-129			Cl	
B-130			SMe	mp 158-159°C
B-131			SOMe	
B-132			SO ₂ Me	mp 208-210°C
B-133			CN	mp 166-168°C
B-134			Cl	mp 186-187°C
B-135			Cl	mp 128-129°C
B-136			Cl	mp 106-120°C
B-137			Cl	
B-138			Cl	mp 198-199°C
B-139			Cl	mp 225-226°C
B-140			SOMe	

表21

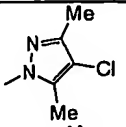
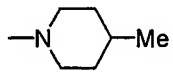
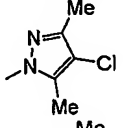
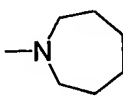
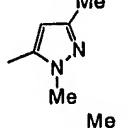
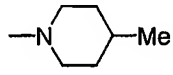
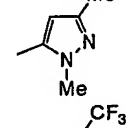
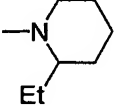
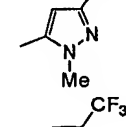
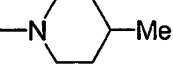
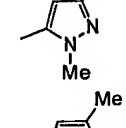
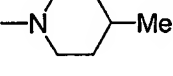
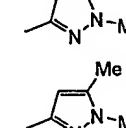
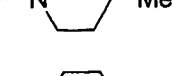
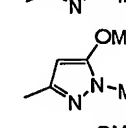
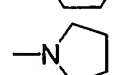
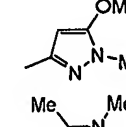
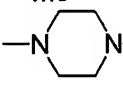
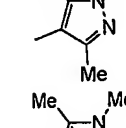
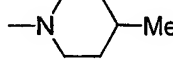
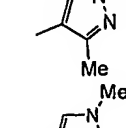
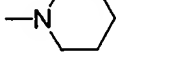
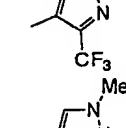
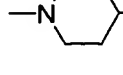
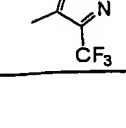
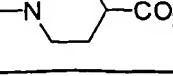

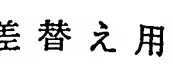
化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-141			Cl	mp 201–202°C
B-142			NHMe	
B-143			Cl	
B-144			OEt	
B-145			Br	
B-146			CN	mp 175–177°C
B-147			Cl	
B-148			Cl	
B-149			Cl	
B-150			Cl	
B-151			Cl	mp 191–192°C
B-152			CN	
B-153			Cl	mp 217–219°C
B-154			OEt	

表22

化合物No.	置換基			物性値
	Het _B	R _B	X _B	
B-155			Cl	mp 138-139°C
B-156			Cl	
B-157			SOMe	
B-158			CN	
B-159			Cl	mp 210-211°C
B-160			Cl	
B-161			Cl	
B-162			CN	

表23

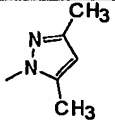
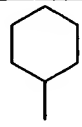
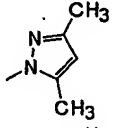
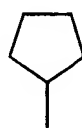
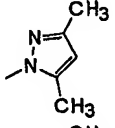

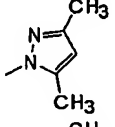
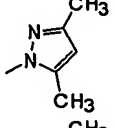
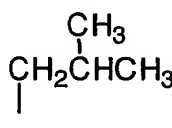
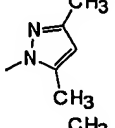
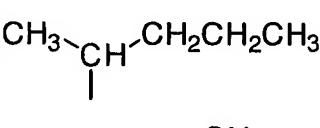
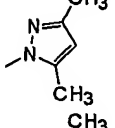
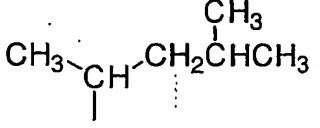
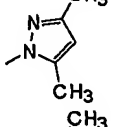
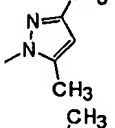
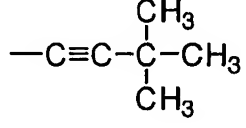
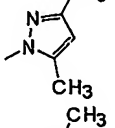
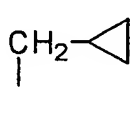
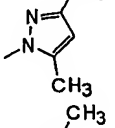
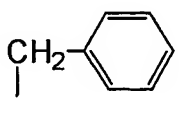
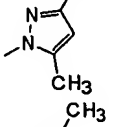
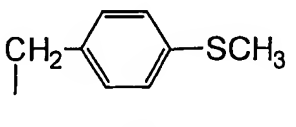
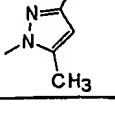
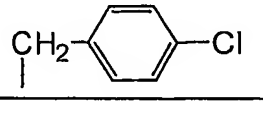
化合物No.	置換基			物性値
	Het _C	X _C	R _C	
C-1		Cl		mp 204-5°C
C-2		Cl		
C-3		Cl		
C-4		Cl	CH ₃	
C-5		Cl		mp 137-9°C
C-6		Cl		mp 134-6°C
C-7		Cl		
C-8		Cl	-CH ₂ CH=CH ₂	
C-9		Cl		oil
C-10		Cl		oil
C-11		Cl		mp 60-1°C
C-12		Cl		
C-13		Cl		

表24

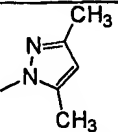
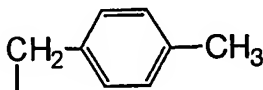
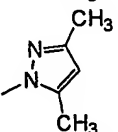
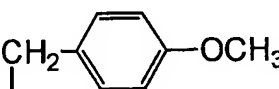
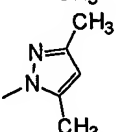
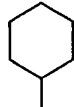
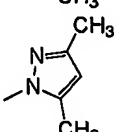
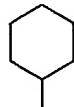
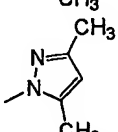
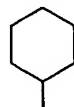
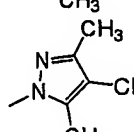
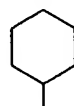
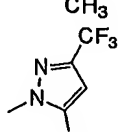
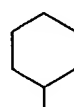
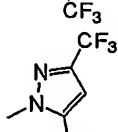
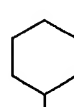
化合物No.	置換基			物性値
	Het _C	X _C	R _C	
C-14		Cl		
C-15		Cl		
C-16		CN		
C-17		OCH ₃		
C-18		SCH ₃		
C-19		Cl		
C-20		Cl		
C-21		Cl		

表25

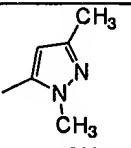
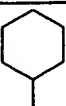
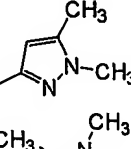

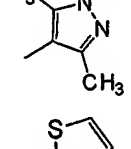
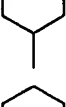
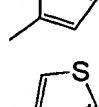
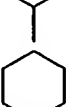
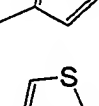
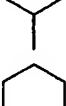
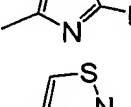
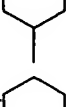
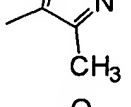

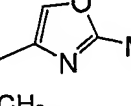
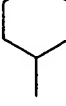
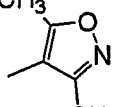

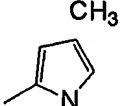

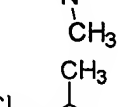
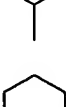
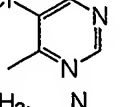
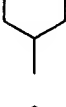
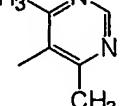

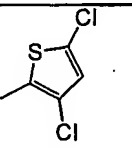
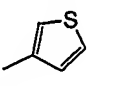
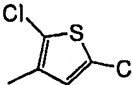
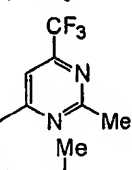
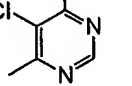
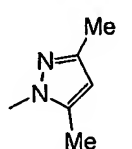
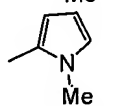
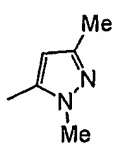
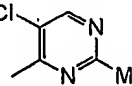
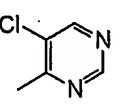
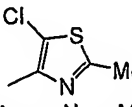
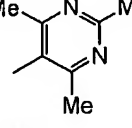
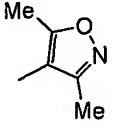
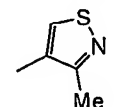
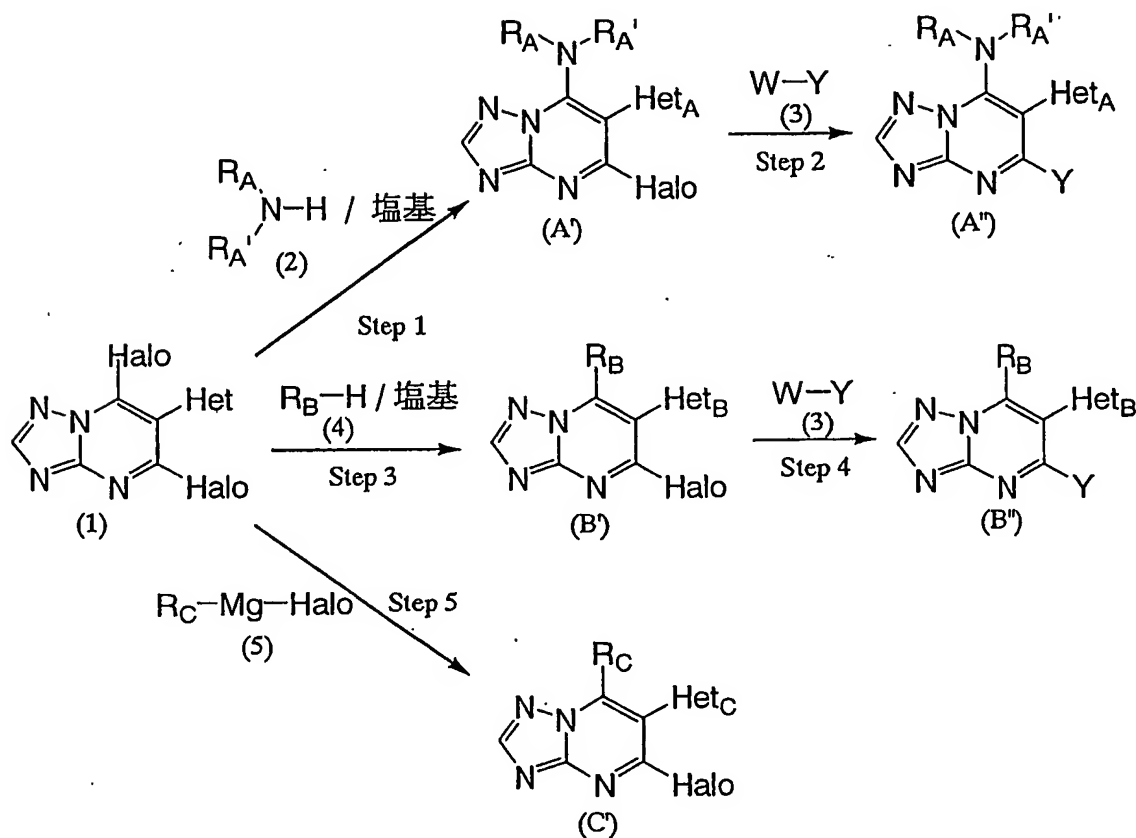
化合物No.	置換基			物性値
	Het _C	X _C	R _C	
C-22		Cl		
C-23		Cl		
C-24		Cl		
C-25		Cl		
C-26		Cl		
C-27		Cl		
C-28		Cl		
C-29		Cl		
C-30		Cl		
C-31		Cl		
C-32		Cl		
C-33		Cl		
C-34		Cl		

表26

化合物No.			物性値
	Het	Halo	
1		Cl	mp 156-158°C
2		Cl	mp 147-151°C
3		Cl	mp 165-170°C
4		Cl	mp 170-171°C
5		Cl	mp 153-157°C
6		Cl	mp 156-160°C
7		Cl	mp 159-160°C
8		Cl	mp 161-163°C
9		Cl	mp 165-169°C
10		Cl	mp 130-135°C
11		Cl	mp 169-172°C
12		Cl	mp 168-171°C
13		Cl	mp 163-165°C
14		Cl	mp 162-164°C

一般式 (A)、一般式 (B) または一般式 (C) で表されるトリアゾロピリミジン誘導体は、下記のスキーム 1 に示される方法によって製造することができる。

スキーム 1



(式中 Halo はハロゲン原子を示し、Het_A、Het_B および Het_Cならびに R_A、R_{A'}、R_B、R_Cは前記と同様であり、Het は Het_A、Het_B または Het_C のいずれかを示し、W は水素原子またはナトリウム、カリウムなどのアルカリ金属原子を示し、Y はシアノ基、C1~C6 アルコキシ基、C1~C6 アルキルチオ基、C1~C6 アルキルスルフィニル基、C1~C6 アルキルスルホニル基、C1~C6 アルキルアミノ基または C1~C6 アルコキシカルボニル基を示す)

一般式 (1) の化合物と一般式 (2) の化合物とを反応させる工程 (Step 1) または一般式 (1) の化合物と一般式 (4) の化合物とを反応させ

る工程 (Step 3) は、一般式 (1) の化合物に対して好ましくは 1 当量の一般式 (2) の化合物または一般式 (4) の化合物を加え、1.0 ~ 2.5 当量の塩基の存在下、適当な有機溶媒中で行われる。反応温度は、20 ~ 150 °C であり、反応時間は 1 ~ 8 時間である。塩基としては、トリエチルアミン、N, N-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、油性水素化ナトリウムなどの無機塩基類が使用できる。有機溶媒としては、トルエン、キシレンなどの炭化水素類、クロロホルム、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素類、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、アセトニトリルなどのニトリル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなどのアミド類およびジメチルスルホキシドなどが使用できる。反応終了後は、反応液に水と、ベンゼン、トルエン、クロロホルムなどの有機溶媒を加えて抽出し、有機溶媒層を無水硫酸ナトリウム、無水硫酸マグネシウムなどにより脱水後、溶媒を留去するなどの通常処理を行う。必要ならば、クロマトグラフィーなどの操作によって精製を行う。なお、本反応の原料化合物である一般式 (2) の化合物および一般式 (4) の化合物は、市販品として入手可能であるか、または公知の方法により容易に製造できる公知化合物である。

このようにして得られた 5-ハロゲントリアゾロピリミジン誘導体 (A') または (B') を、塩基の存在下に、一般式 (3) で表される化合物であるアルコール、アルキルアミンまたはチオールなどと、あるいはアルカリ金属シアニドなどと反応させる (Step 2 または Step 4) ことにより一般式 (A'') または (B'') で表されるトリアゾロピリミジン誘導体を製造することができる。なお、本反応の原料化合物である一般式 (3) で表される化合物は、市販品として入手可能であるか、または公知の方法により容易に製造できる公知化合物である。このような一般式 (3) で表される化合物の例としては、例えばメチルアルコール、エチルアルコール、イソプロピルアルコール、メチルアミン、エチルアミ

ン、メチルメルカプトナトリウム、シアン化ナトリウム、シアン化カリウムなどが挙げられる。

一般式(1)で表される化合物と一般式(5)で表される化合物とを反応させる工程(Step 5)は、化合物(1)に対して好ましくは1当量の化合物(5)を加え、0.01~1.0当量のパラジウムまたはニッケルなどの遷移金属の存在下、適当な有機溶媒中で行われる。この反応によって、一般式(C)で表わされる化合物のうち、Xがハロゲン原子である、5-ハロゲントリアゾロピリミジン誘導体(化合物(C'))が得られる。有機溶媒としては、トルエン、キシレンなどの炭化水素類またはジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類などが使用できる。反応温度は、20~150℃であり、好ましくは、使用される有機溶媒の沸点に近い温度であり、反応時間は1~8時間である。

さらに、得られた一般式(C')で表される5-ハロゲントリアゾロピリミジン誘導体を、塩基の存在下にアルコールまたはチオールを用いて、または金属シアニドなどと反応することにより、本発明の一般式(C)で表されるトリアゾロピリミジン誘導体を製造することができる。本反応で使用する塩基の例としては、例えばトリエチルアミン、N,N-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、水酸化ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウムまたは水素化ナトリウムなどの無機塩基が挙げられ、金属シアニドの例としては、例えばシアン化ナトリウム、シアン化カリウムなどが挙げられる。

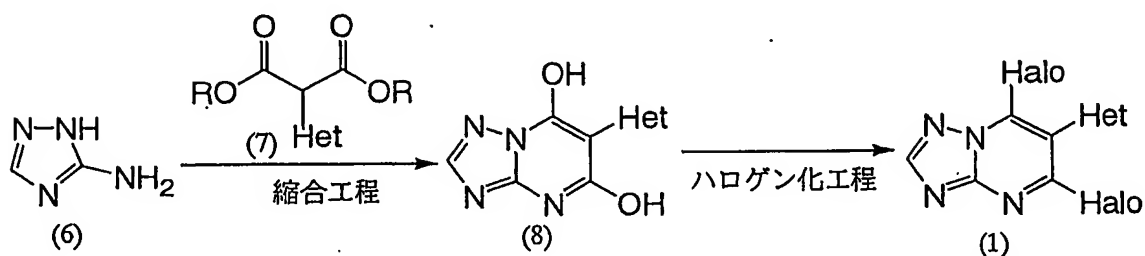
反応終了後は、反応液に水およびベンゼン、トルエンまたはクロロホルムなどの有機溶媒を加えて抽出し、分液操作をした後、有機溶媒層を無水硫酸ナトリウムまたは無水硫酸マグネシウムなどで脱水し、有機溶媒を留去するなどの通常の処理を行う。また必要ならば、クロマトグラフィー、再結晶などの操作で精製を行う。

上記した本反応の一方の原料化合物である化合物(5)は公知化合物であり、市販品を入手して用いるか、または公知の方法により製造して

用いることができる。

上記スキーム 1 中の、一般式 (1) で表されるジハロゲントリアゾロピリミジン誘導体は、以下に示すスキーム 2 に従って製造することができる。

スキーム 2



(式中 Halo はハロゲン原子を示し、R は C1~C10 のアルキル基を示し、Het は Het_A、Het_B または Het_C のいずれかを示し、ここで Het_A、Het_B および Het_C は前記と同様である。)

すなわち、一般式(1)で表される化合物は、一般式(7)で表されるマロン酸エステル誘導体と一般式(6)で表される3-アミノ-1,2,4-トリアゾールを縮合させて一般式(8)で表される化合物を得て、これをハロゲン化することにより製造することができる。この反応を次の縮合工程とハロゲン化工程に分けて説明する。

(縮合工程) 化合物(7)と化合物(6)とを反応させる工程は、化合物(6)に対して好ましくは1当量の化合物(7)を加え、1~5当量の塩基の存在下、必要に応じて適当な有機溶媒中で行われる。この反応工程で用いられる塩基としては、ナトリウムメトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド、トリエチルアミン、トリーn-プロピルアミン、トリーn-ブチルアミン、ピリジン、ジメチルアミノピリジン、N,N-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウムなどの無機塩基類である。有機溶媒としては、トルエン、キシレンなどの炭化水素類、クロロベンゼンなどのハロゲン化

炭化水素類、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、メタノール、エタノール、*n*-ブタノールなどのアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなどのアミド類およびジメチルスルホキシドなどが使用できる。上記反応を円滑にするうえで好ましい反応温度は、20～150℃であり、好ましくは、使用される有機溶媒の沸点に近い温度であり、反応時間は、使用する原料化合物、触媒、反応温度などによって異なるが、一般的には1～8時間である。こうして反応させれば、化合物(8)が得られる。この化合物を分取して次の反応に用いてもよいが、そのまま次の反応工程に用いることが好ましい。

(ハロゲン化工程) 上記反応で得た化合物(8)をハロゲン化して化合物(1)を得る工程は、上記工程で生成した化合物(8)を含む反応溶液に、必要に応じて脱酸剤の存在下、化合物(8)に対し1～10当量のハロゲン化剤を加えて反応させればよい。次に、反応液から使用した溶媒および過剰のハロゲン化剤を留去するなどの通常処理を行うか、さらに必要ならば、クロマトグラフィー、再結晶などの操作によって精製を行うことで、目的とする化合物(1)を得ることができる。ハロゲン化工程に使用できる脱酸剤としては、トリエチルアミン、トリー*n*-プロピルアミン、トリー*n*-ブチルアミン、ピリジン、ジメチルアミノピリジン、*N*, *N*-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウムなどの無機塩基類があげられる。ハロゲン化工程に使用できるハロゲン化剤の例としては、オキシ塩化リン、オキシ臭化リンなどがあげられる。上記ハロゲン化剤は溶媒も兼ねるので、該反応は特に反応溶媒を必要としないが、反応に有機溶媒を使用するときは、例えばベンゼン、トルエンなどの炭化水素類、クロロベンゼン、クロロホルムなどのハロゲン化炭化水素類などが使用できる。ハロゲン化の反応温度は、50～150℃であり、反応時間は1～10時間である。

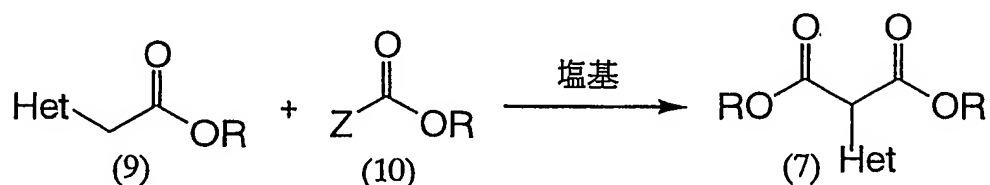
また、得られた一般式(1)で表されるハロゲントリアゾロピリミジン

誘導体を、必要に応じて 0.05～2.5 当量の塩基の存在下、化合物 (1) に対し、1～10 当量のハロゲン化剤を加え、適当な有機溶媒中で反応させることにより、Het 上の水素原子をハロゲン原子に置換させることができる。反応で利用できるハロゲン化剤の例としては、塩素、塩化スルフリル、N-クロロスクシンイミド、臭素、N-ブロモスクシンイミドなどが使用できる。反応に使用できる塩基としては、トリエチルアミン、トリーn-プロピルアミン、トリーn-ブチルアミン、ピリジン、ジメチルアミノピリジン、N,N-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウムなどの無機塩基類が使用できる。ハロゲン化の反応温度は、50～150℃であり、反応時間は1～10時間である。有機溶媒として、ベンゼン、トルエンなどの炭化水素類、クロロベンゼン、クロロホルムなどのハロゲン化炭化水素類などが使用できる。

一般式 (7) で表されるマロン酸エステル誘導体は、下記するスキーム 3 に示す方法(Method 1～Method 3)により製造することができる。

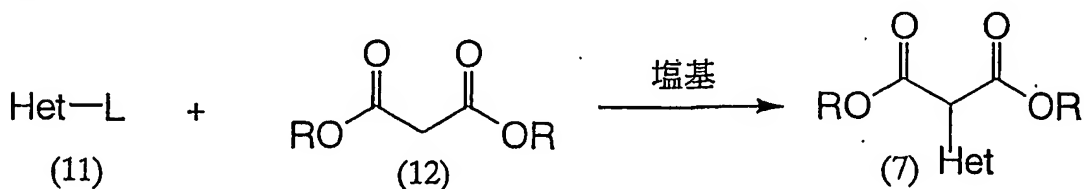
スキーム 3

Method 1



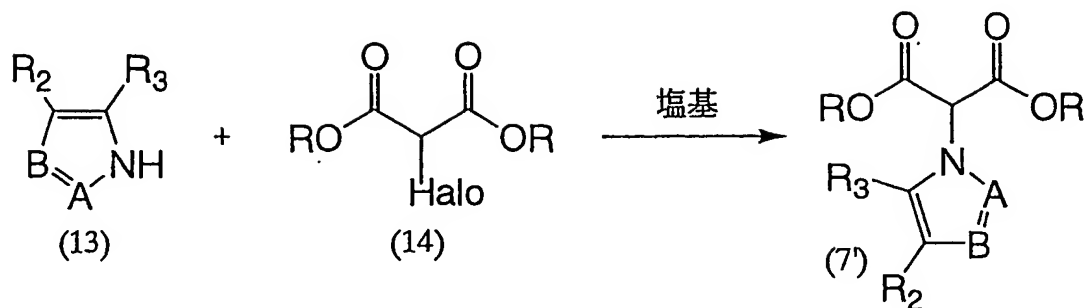
(式中、Het および R は、前記と同じ意味を表し、Z はハロゲン原子または C1～C10 アルコキシ基を表す。)

Method 2



(式中、Het および R は、前記と同じ意味を表し、L はハロゲン原子、p-トルエンスルホニル基、メタンスルホニル基などの脱離基を表す。)

Method 3



(式中、H a l o、R、R₂およびR₃は、前記と同じ意味を表し、AおよびBは窒素原子およびC R₁、あるいはC R₁および窒素原子を表し、ここでR₁は前記と同じ意味を表す。)

以下、Method 1～3のそれぞれについて、詳細に説明する。

(Method 1) 一般式(9)で表される化合物と一般式(10)で表される化合物との反応は、化合物(9)に対して1～2当量の化合物(10)に加え、必要に応じて1～2当量の塩基の存在下、適当な有機溶媒中で行われる。反応温度は、-70～150℃であり、反応時間は1～8時間である。塩基としては、ナトリウムメトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド、トリエチルアミン、N,N-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、油性水素化ナトリウムなどの無機塩基類、リチウムジイソプロピルアミンなどが使用できる。有機溶媒としては、トルエン、キシレンなどの炭化水素類、クロロホルム、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素類、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなどのアミド類およびジメチルスルホキシドなどが使用できる。反応終了後は、反応液に水と、ベンゼン、トルエンまたはクロロホルムなどの有機溶媒を加えて抽出し、有機溶媒層を無水硫酸ナトリウム、無水硫酸マグネシウムなどにより脱水後、溶媒を留去するなどの通常処理を行う。必要ならば、クロマトグラフィー、再結晶などの操作によって精製を行う。

なお、本反応の原料化合物である一般式（９）および一般式（１０）で表される化合物は、公知化合物であり、市販品を入手して用いるか、または公知の方法により製造して用いることができる。

（Method 2） 一般式（１１）で表される化合物と一般式（１２）で表される化合物とを反応させる工程は、化合物（１１）に対して１～２．５当量の化合物（１２）を加え、必要に応じて１．０～２．５当量の塩基の存在下、適当な有機溶媒中で行われる。反応温度は、２０～１５０℃であり、反応時間は１～８時間である。塩基としては、ナトリウムメトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド、トリエチルアミン、N，N-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、油性水素化ナトリウムなどの無機塩基類が使用できる。有機溶媒としては、トルエン、キシレンなどの炭化水素類、クロロホルム、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素類、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、アセトニトリルなどのニトリル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなどのアミド類およびジメチルスルホキシドなどが使用できる。反応終了後は、反応液に水とベンゼン、トルエン、クロロホルムなどの有機溶媒を加えて抽出し、有機溶媒層を無水硫酸ナトリウム、無水硫酸マグネシウムなどにより脱水後、溶媒を留去するなどの通常処理を行う。必要ならば、クロマトグラフィーなどの操作によって精製を行う。

なお、本反応の原料化合物である一般式（１１）および一般式（１２）で表される化合物は、公知化合物であり、市販品を入手して用いるか、または公知の方法により製造して用いることができる。

（Method 3） 一般式（１３）で表される化合物と一般式（１４）で表される化合物とを反応させる工程は、化合物（１３）に対して１～２．５当量の化合物（１４）を加え、必要に応じて１．０～２．５当量の塩基の存在下、適当な有機溶媒中で行われる。反応温度は、２０～１５０℃であり、好ましくは、使用される有機溶媒の沸点に近い温度、反応時間

は1～8時間である。塩基としては、ナトリウムメトキシドなどのアルカリ金属アルコキシド、トリエチルアミン、N，N-ジエチルアニリンなどの有機塩基類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、油性水素化ナトリウムなどの無機塩基類が使用できる。有機溶媒としては、トルエン、キシレンなどの炭化水素類、クロロホルム、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素類、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、アセトニトリルなどのニトリル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなどのアミド類およびジメチルスルホキシドなどが使用できる。反応終了後は、反応液に水とベンゼン、トルエン、クロロホルムなどの有機溶媒を加えて抽出し、有機溶媒層を無水硫酸ナトリウム、無水硫酸マグネシウムなどにより脱水後、溶媒を留去するなどの通常処理を行う。必要ならば、クロマトグラフィー、再結晶などの操作によって精製を行う。

なお、本反応の原料化合物である一般式(13)および一般式(14)の化合物は、公知化合物であり、市販品を入手して用いるか、または公知の方法により製造して用いることができる。

一般式(A)、一般式(B)または一般式(C)で表される誘導体は、その塩を含む。該塩としては、塩酸塩、硫酸塩などの無機酸塩、酢酸塩、シュウ酸塩、メタンスルホン酸塩などの有機酸塩が挙げられる。

一般式(A)、一般式(B)または一般式(C)で表される誘導体(以下、「本発明に係る化合物」ともいう)は、殺菌活性を示す。従って、本発明に係る化合物の一または複数を含む組成物を殺菌剤として使用することができる。特に、本発明に係る化合物の一または複数を含む組成物を、農園芸用殺菌剤として用いることができる。

本発明に係る化合物のなかで、農園芸用殺菌剤の成分として好ましい化合物は、表1～表25に示されるトリアゾロピリミジン誘導体であるが、さらに好ましくは、以下に記載する表27～31中に示されるトリアゾロピリミジン誘導体である。表27～31におけるカッコ内の化合

物No. は表 1 ～ 2 5 における化合物No. に対応する。

表 2 7

5-クロロ-6-(3,5-ジクロロ-2-チエニル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-2)

5-クロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-{N-(2-ブテニル)-エチルアミノ}-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-21)

5-クロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-{N-(2-メチル-2-プロベニル)-エチルアミノ}-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-22)

5-クロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-{N-(2-ブテニル)-2,2,2-トリフルオロエチルアミノ}-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-23)

5-クロロ-6-(5-クロロ-6-エチル-4-ピリミジル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-49)

5-クロロ-6-(5-クロロ-6-メチル-4-ピリミジル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-50)

5-クロロ-6-(5-ブロモ-6-メチル-4-ピリミジル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-52)

5-クロロ-6-(5,6-ジメチル-4-ピリミジル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-57)

5-クロロ-6-(2,5-ジメチル-4-ピリミジル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-60)

5-クロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-64)

5-クロロ-6-(1-メチル-2-ピロリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-74)

表 2 8

5-クロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-チアゾリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-84)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-99)

5-メチルチオ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-102)

5-シアノ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-105)

5-クロロ-6-(3-エチル-5-メチル-1-ピラゾリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-112)

5-クロロ-6-(3,4,5-トリメチル-1-ピラゾリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-116)

5-クロロ-6-(1,5-ジメチル-3-ピラゾリル)-7-(N-メチル-2-メチルプロピルアミノ)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. A-124)

5-クロロ-6-(3,5-ジクロロ-2-チエニル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-8)

5-クロロ-6-(3,5-ジクロロ-2-チエニル)-7-(4-エトキシカルボニル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-11)

5-クロロ-6-(3-チエニル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-16)

5-クロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-19)

5-クロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-(1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-23)

表 2 9

5-クロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-(4-メチル-1-ピペラジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-24)

5-クロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-(4-エトキシカルボニル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-28)

5-シアノ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-32)

5-クロロ-6-(2,3,5-トリクロロ-4-チエニル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-39)

5-クロロ-6-(2,3,5-トリクロロ-4-チエニル)-7-(1,4-オキサジン-4-イル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-41)

5-クロロ-6-(2,5-ジブromo-3-チエニル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-43)

5-クロロ-6-(2-メチル-4-トリフルオロメチル-6-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-50)

5-クロロ-6-(5-クロロ-6-メチル-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-57)

5-クロロ-6-(5-フルオロ-6-メチル-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-60)

5-クロロ-6-(5-クロロ-6-エチル-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-61)

5-クロロ-6-(5-クロロ-6-イソプロピル-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン (化合物No. B-62)

表 3 0

5-クロロ-6-(5-クロロ-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-63)

5-クロロ-6-(5-ブロモ-6-メチル-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-64)

5-クロロ-6-(2-メチル-5-フルオロ-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-66)

5-クロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-68)

5-クロロ-6-(5-フルオロ-6-フルオロメチル-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-72)

5-クロロ-6-(2,5-ジメチル-4-ピリミジル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-76)

5-クロロ-6-(1-メチル-2-ピロリル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-93)

5-クロロ-6-(1-メチル-5-クロロ-2-ピロリル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-97)

5-クロロ-6-(2-メチル-4-チアゾリル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-102)

5-クロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-チアゾリル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-103)

5-クロロ-6-(3,5-ジトリフルオロメチル-1-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピベリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-115)

表 3 1

5-クロロ-6-(3-トリフルオロメチル-5-メトキシ-1-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-124)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-127)

5-シアノ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-133)

5-クロロ-6-(3-エチル-5-メチル-1-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-136)

5-クロロ-6-(3,4,5-トリメチル-1-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-138)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-4-クロロ-1-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-141)

5-クロロ-6-(1,5-ジメチル-3-ピラゾリル)-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. B-147)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-シクロヘキシル-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. C-1)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-(2-メチルプロピル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. C-5)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-(1-メチルブチル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. C-6)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-シクロプロピルメチル-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. C-10)

5-クロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-7-ベンジル-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン(化合物No. C-11)

本発明に係る化合物は、広範囲の種類糸状菌に属する菌に対し、優れた殺菌力を有する。従って、本発明に係る化合物を有効成分とする組成物は、花卉、芝などを含む農園芸作物の種々の病害に対して、茎葉散布、水面施用、土壌施用、または種子処理などにより使用することができる。

本発明に係る化合物は、特に以下に記載する表 3 2 ～ 3 4 中で示される病害の防除における防除効果が高い。

表 3 2

キュウリ	うどんこ病 (<i>Sphaerotheca fuliginea</i>)
	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	菌核病 (<i>Sclerotinia sclerotiorum</i>)
	黒星病 (<i>Cladosporium cucumerinum</i>)
	べと病 (<i>Pseudoperonospora cubensis</i>)
	疫病 (<i>Pytophthora</i> sp.)
	つる枯病 (<i>Mycosphaerella melonis</i>)
	つる割病 (<i>Fusarium oxysporum</i>)
ナス	うどんこ病 (<i>Sphaerotheca fuliginea</i>)
	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	すすかび病 (<i>Mycovellosiella nattrassii</i>)
	黒枯病 (<i>Corynespora melongenae</i>)
	褐紋病 (<i>Phomopsis vexans</i>)
インゲン	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	菌核病 (<i>Sclerotinia sclerotiorum</i>)
アズキ	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	菌核病 (<i>Sclerotinia sclerotiorum</i>)
オオムギ	うどんこ病 (<i>Erysiphe graminis</i> f. sp. hordei)
	裸黒穂病 (<i>Ustilago nuda</i>)
	網斑病 (<i>Pyrenophora teres</i>)
	なまぐさ黒穂病 (<i>Tilletia controversa</i>)
コムギ	うどんこ病 (<i>Erysiphe graminis</i> f. sp. tritici)
	赤かび病 (<i>Gibberella zeae</i>)
	赤さび病 (<i>Puccinia recondita</i>)
	斑点病 (<i>Cochliobolus sativus</i>)
	眼紋病 (<i>Pseudocercospora herpotrichoides</i>)
	ふ枯病 (<i>Leptoshaeria nodorum</i>)
	葉枯病 (<i>Septoria tritici</i>)
	紅色雪腐病 (<i>Micronectriella nivalis</i>)
	雪腐病 (<i>Typhula</i> sp., <i>Micronectriella nivalis</i>)
イチゴ	うどんこ病 (<i>Sphaerotheca humuli</i>)
	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	炭疽病 (<i>Colletotrichum gloeosporioides</i>)

表 3 3

トマト	うどんこ病 (<i>Oidium violae</i>)
	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	葉かび病 (<i>Fulvia fulva</i>)
	疫病 (<i>Phytophthora infestans</i>)
	輪紋病 (<i>Alternaria solani</i>)
ブドウ	うどんこ病 (<i>Uncinula necator</i>)
	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	べと病 (<i>Plasmopara viticola</i>)
	さび病 (<i>Physopella ampelopsidis</i>)
	晩腐病 (<i>Glomerella cingulata</i>)
	黒とう病 (<i>Elsioe ampelina</i>)
リンゴ	うどんこ病 (<i>Podosphaera leucotricha</i>)
	黒星病 (<i>Venturia inaequalis</i>)
	腐らん病 (<i>Valsa ceratosperma</i>)
	斑点落葉病 (<i>Alternaria mali</i>)
	褐斑病 (<i>Diplocarpon mali</i>)
	モニリア病 (<i>Monilinia mali</i>)
	黒点病 (<i>Mycosphaerella pomi</i>)
	黒星病 (<i>Venturia nashicola</i>)
ナシ	黒斑病 (<i>Alternaria kikuchiana</i>)
	赤星病 (<i>Gymnosporangium asiaticum</i>)
	輪紋病 (<i>Botryosphaeria berengeriana</i>)
カキ	うどんこ病 (<i>Phyllactinia kakicola</i>)
	炭疽病 (<i>Gloeosporium kaki</i>)
	円星落葉病 (<i>Mycosphaerella nawae</i>)
	角斑落葉病 (<i>Cercospora kaki</i>)
モモ	灰星病 (<i>Monilinia fructicola</i>)
	黒星病 (<i>Cladosporium carpophilum</i>)
タマネギ	灰色かび病 (<i>Botrytis cinerea</i>)
	灰色腐敗病 (<i>Botrytis allii</i>)
	炭疽病 (<i>Colletotrichum lindemuthianum</i>)
チャ	輪斑病 (<i>Pestalotia theae</i>)
	炭疽病 (<i>Colletotrichum theae sinensis</i>)
	網もち病 (<i>Exobasidium reticulatum</i>)
	白星病 (<i>Elsinoe leucospila</i>)

表 3 4

カンキツ	灰色かび病	(<i>Botrytis cinerea</i>)
	そうか病	(<i>Elsinoe fawcettii</i>)
	青かび病	(<i>Penicillium italicum</i>)
	緑かび病	(<i>Penicillium digitatum</i>)
	黒点病	(<i>Diaporthe citri</i>)
イネ	いもち病	(<i>Pyricularia oryzae</i>)
	紋枯病	(<i>Rhizoctonia solani</i>)
	馬鹿苗病	(<i>Gibberella fujikuroi</i>)
	こま葉枯病	(<i>Cochliobolus miyabeanus</i>)
タバコ	うどんこ病	(<i>Erysiphe cichoracearum</i>)
	菌核病	(<i>Sclerotinia sclerotiorum</i>)
	疫病	(<i>Phytophthora nicotianae</i>)
	赤星病	(<i>Alternaria longipes</i>)
	炭疽病	(<i>Collectotrichum tabacum</i>)
	灰色かび病	(<i>Botrytis cinerea</i>)
チューリップ バラ	うどんこ病	(<i>Sphaerotheca pannosa</i>)
	黒星病	(<i>Diplocarpon rosae</i>)
	褐斑病	(<i>Septoria chrysanthemi-indici</i>)
キク	白さび病	(<i>Puccinia horiana</i>)
	紫斑病	(<i>Cercospora kikuchii</i>)
ダイズ ジャガイモ	疫病	(<i>Phytophthora infestans</i>)
	夏疫病	(<i>Alternaria solani</i>)
テンサイ ラッカセイ	褐斑病	(<i>Cercospora beticola</i>)
	褐斑病	(<i>Mycosphaerella arachidis</i>)
	黒渋病	(<i>Mycosphaerella berkeleyi</i>)

本発明に係る化合物を農園芸用殺菌剤の成分として用いる場合は、本発明に係る化合物を慣用の処方により製剤化して使用することができる。すなわち、本発明に係る化合物と適当な担体および補助剤、たとえば界面活性剤、結合剤、安定剤などを配合して、農薬の製剤として一般に使用される製剤にすることができる。すなわち、本発明の一般式(1)の化合物は、例えば、粉剤、粗粉剤、DL（ドリフトレス型）粉剤、フロダスト剤、微粒剤、細粒剤、粒剤、錠剤、水和剤、水和顆粒剤、ゾル剤（フロアブル剤）、乳剤および油剤などに製剤化できる。なお、製剤化できる剤型はここに挙げたものに限られるものではない。

製剤化に際して使用できる担体としては、農園芸用殺菌剤に常用される担体であれば、固体担体または液体担体のいずれでも使用することができ、特定のものに限定されない。

このような固体担体としては、例えば、デンプン、活性炭、大豆粉、小麦粉、木粉、魚粉、粉乳などの動植物性粉末、タルク、カオリン、ベントナイト、ゼオライト、珪藻土、ホワイトカーボン、クレイ、アルミナ、炭酸カルシウム、塩化カリウム、硫酸などの鉱物性粉末が挙げられる。

液体担体としては、例えば、水；イソプロピルアルコール、エチレングリコールなどのアルコール類；シクロヘキサノン、メチルエチルケトンなどのケトン類；プロピレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノ-*n*-ブチルエーテルなどのエーテル類；ケロシン、軽油などの脂肪族炭化水素類；キシレン、トリメチルベンゼン、テトラメチルベンゼン、メチルナフタリン、ソルベントナフサなどの芳香族炭化水素類；*N*-メチル-2-ピロリドンなどのアミド類；脂肪酸のグリセリンエステルなどのエステル類；大豆油、ナタネ油などの植物油が挙げられる。

これらの担体は、単独で用いることもでき、2種以上を併用することもできる。

また、製剤化に際して使用できる界面活性剤としては、非イオン性界面活性剤、陰イオン性界面活性剤、陽イオン性界面活性剤、両性界面活性剤などがあり、具体的には次のものが使用できる。

非イオン性界面活性剤の例としては、例えば、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエステル、ポリオキシエチレンソルビタンアルキレート、ポリオキシエチレンフェニルエーテルポリマー、ポリオキシエチレンアルキレンアリールフェニルエーテル、ポリオキシエチレンアルキレングリコール、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンブロックポリマーなどが挙げられる。

陰イオン性界面活性剤の例としては、例えば、リグニンスルホン酸塩、アルキルアリールスルホン酸塩、ジアルキルスルホサクシネート、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテルサルフェート、アルキルナフタレンスルホン酸塩、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテルサルフェートなどが挙げられる。

陽イオン性界面活性剤の例としては、例えば、アルキルアミン塩などが挙げられる。

両性界面活性剤の例としては、例えば、第4級アンモニウム塩アルキルベタイン、アミノオキサイドなどが挙げられる。

なお、製剤化に際して使用できる界面活性剤は、これらに限定されず、これらを単独で用いてもよく、2種以上を併用することもできる。

その他の補助剤として、粘結剤、増粘剤、固着剤、防腐剤、かび剤、溶剤、農薬活性成分の安定化剤、酸化防止剤、紫外線防止剤、結晶析出防止剤、消泡剤、物性向上剤、着色剤などが挙げられるが、これらに限定されず、これらの補助剤を、それぞれ必要に応じて添加することができる。

粘結剤、増粘剤、固着剤としては、特に限定されるものではないが、

例えば、デンプン、デキストリン、セルロース、メチルセルロース、エチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、カルボキシメチルデンプン、プルラン、アルギン酸ナトリウム、アルギン酸アンモニウム、アルギン酸プロピレングリコールエステル、グアーガム、ローカストビーンガム、アラビアゴム、キサントガム、ゼラチン、カゼイン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンオキサイド、ポリエチレングリコール、エチレン・プロピレンブロックポリマー、ポリアクリル酸ナトリウム、ポリビニルピロリドンなどが挙げられる。

本発明に係る化合物の添加量は、製剤の剤型および使用方法により適宜かえることができ、一般に 0.1～90 重量%の範囲で製剤中に使用するの望ましい。

本発明に係る化合物は、単独で使用しても十分有効であるが、各種の殺菌剤や、殺虫・殺ダニ剤および共力剤から選ばれる 1 種または 2 種以上と混合して使用することもできる。本発明に係る化合物と混合して使用できる殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤の代表例を以下に示す。

(殺菌剤) キャプタン、ホルベット、チウラム、ジラム、ジネブ、マンネブ、マンゼブ、プロピネブ、ポリカーバメート、クロロタロニル、キントーゼン、キャプタホル、イプロジオン、プロシミドン、フルオリミド、メプロニル、フルトラニル、ベンシクロン、オキシカルボキシン、ホセチル、トリアジメホン、トリアジメノール、プロピコナゾール、ジクロブトラゾール、ピテルタノール、ヘキサコナゾール、ミクロブタニル、フルシラゾール、メトコナゾール、エタコナゾール、フルオトリマゾール、シプロコナゾール、エポキシコナゾール、フルトリアフェン、ベンコナゾール、ジニコナゾール、シプロコナゾール、フェナリモル、トリフルミゾール、プロクロラズ、イマザリル、ベフラゾエート、トリデモルフ、フェンプロピモルフ、トリホリン、ピリフェノックス、アニ

ラジン、ポリオキシシ、メタラキシ、オキサジキシ、フララキシ、イソプロチオラン、プロベナゾール、ピロールニトリン、ブラストサイジンS、カスガマイシン、バリダマイシン、硫酸ジヒドロストレプトマイシン、ペノミル、カルベンダジム、チオファネートメチル、ヒメキサゾール、塩基性塩化銅、塩基性硫酸銅、ジエトフェンカルブ、メタスルホカルブ、キノメチオネート、ピナバクリル、レシチン、重曹、ジチアノン、ジノカップ、フェナミノスルフ、ジクロメジン、ドジン、IBP、エディフェンホス、メパニピリム、フェリムゾン、トリクラミド、フルアジナム、エトキノラック、ジメトモルフ、ピロキロン、テクロフタラム、フサライド、フェナジンオキシド、チアベンダゾール、トリシクラゾール、シモキサニル、プロパモカルブ塩酸塩、オキサリニック酸、ヒドロキシイソキサゾール、イミノクタジン三酢酸塩、テトラコナゾール、イミベンコナゾール、メチラムなど。

(殺虫・殺ダニ剤) 有機リン系およびカーバメート系殺虫剤；フェンチオン、フェニトロチオン、ダイアジノン、クロルピリホス、ESP、バミドチオン、フェントエート、ジメトエート、ホルモチオン、マラソン、トリクロルホン、チオメトン、ホスメット、ジクロルボス、アセフェート、EPBP、メチルパラチオン、オキシジメトンメチル、エチオン、サリチオン、シアノホス、イソキサチオン、ピリダフェンチオン、ホサロン、メチダチオン、スルプロホス、クロルフェンビンホス、テトラクロルビンホス、ジメチルビンホス、プロパホス、イソフェンホス、エチルチオメトン、プロフェノホス、ピラクロホス、モノクロトホス、アジンホスメチル、アルディカルブ、メソミル、チオジカルブ、カルボフラン、カルボスルファン、ベンフラカルブ、フラチオカルブ、プロボキスル、BPMC、MTMC、MIPC、カルバリル、ピリミカーブ、エチオフェンカルブ、フェノキシカルブ、EDDPなど。

ピレスロイド系殺虫剤；ベルメトリン、シベルメトリン、デルタメスリン、フェンバレレート、フェンプロパトリン、ピレトリン、アレスリ

ン、テトラメスリン、レスメトリン、ジメスリン、プロバスリン、フェノトリン、プロトリン、フルバリネート、シフルトリン、シハロトリン、フルシトリネート、エトフェンプロクス、シクロプロトリン、トラロメトリン、シラフルオフエン、プロフェンプロクス、アクリナスリンなど。

ベンゾイルウレア系その他の殺虫剤；ジフルベンズロン、クロルフルアズロン、ヘキサフルムロン、トリフルムロン、テトラベンズロン、フルフェノクスロン、フルシクロクスロン、ブプロフェジン、ピリプロキシフェン、メトプレン、ベンゾエピン、ジアフェンチウロン、アセタミプリド、イミダクロプリド、ニテンピラム、フィプロニル、カルタップ、チオシクラム、ベンスルタップ、硫酸ニコチン、ロテノン、メタアルデヒド、機械油、B Tや昆虫ウィルスなどの微生物農薬など。

(殺線虫剤) フェナミホス、ホスチアゼートなど。

(殺ダニ剤) クロルベンジレート、フェニソプロモレート、ジコホル、アミトラズ、B P P S、ベンゾメート、ヘキシチアゾクス、酸化フェンブタスズ、ポリナクチン、キノメチオネート、C P C B S、テトラジホン、アベルメクチン、ミルベメクチン、クロフェンテジン、シヘキサチン、ピリダベン、フェンピロキシメート、テブフェンピラド、ピリミジフェン、フェノチオカルブ、ジェノクロルなど。

一般式 (A)、一般式 (B) または一般式 (C) で表される化合物を活性成分として含有する農園芸用殺菌剤 (以下、「本発明に係る農園芸用殺菌剤」ともいう) の使用方法は、一般に次のとおりである。すなわち、水和剤、液剤、乳剤、ゾル剤 (フロアブル剤)、顆粒水和剤および油剤の場合は、水で 50 ~ 10000 倍に希釈して、一般に活性成分が 1 ~ 10000 ppm の濃度の液に調整される。そしてこの希釈液を 10 アール当たり 10 ~ 2000 リットル、通常は 20 ~ 700 リットルの範囲で植物の病害発生部位の茎葉に散布される。

また、液剤、乳剤およびゾル剤 (フロアブル剤) の場合は、水で希釈せずに濃厚液のまま、または水で 50 倍以内に希釈して主に空中散布用

の微量散布剤（LV散布、ULV散布、S散布）として、10アール当たり50～5000mlの量がヘリコプターなどを使って散布される。

また、粉剤、粗粉剤、DL粉剤、フローダスト剤、微粒剤、細粒剤および粒剤の場合は、10アール当たり2～5kg（活性分量として5～500g程度）が、植物の病害発生部位の茎葉、土壌表面、土壌中または水面に施用される。

発明を実施するための最良の形態

以下に、実施例を示して、本発明についてさらに詳細に説明するが、本発明がこれら実施例にのみ限定されない。

実施例1～13（製造実施例）

一般式（A）で表される化合物の製造方法（実施例1～4）

実施例1

5-クロロ-7-メチルイソブチルアミノ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジンの製造（化合物No. A-11）

50ml容量の4つ口フラスコ中に、クロロホルムの20mlに5,7-ジクロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン2g(6mmol)を溶解して加え、これにトリエチルアミン0.8g(8mmol)およびメチルイソブチルアミン0.5g(6mmol)を溶解したクロロホルム5mlを滴下し、室温下30分間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下溶媒を留去し得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；トルエン：アセトン＝20：1）にて精製し、標記化合物の5-クロロ-7-メチルイ

ソブチルアミノ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン 2.1 g (収率 90%) が白色結晶物 (融点 162~163°C) として得られた。

MS (M+ 390): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.35 (s, 1H); 6.80 (s, 1H); 3.20 (s, 3H); 3.06 (m, 1H); 2.82 (m, 1H); 1.92 (m, 1H); 0.81 (d, 6H))

実施例 2

5-クロロ-7-メチルイソブチルアミノ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジンの製造 (化合物 No. A-64)

50 ml 容量の 4 口フラスコ中に、クロロホルムの 20 ml に 5,7-ジクロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン 1.9 g (6 mmol) を溶解して加え、これにトリエチルアミン 0.8 g (8 mmol) およびメチルイソブチルアミン 0.5 g (6 mmol) を溶解したクロロホルム 5 ml を滴下し、室温下 30 分間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水で 2 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー (展開溶媒; トルエン: アセトン = 20:1) にて精製し、標記化合物の 5-クロロ-7-メチルイソブチルアミノ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン 1.8 g (収率 80%) が白色結晶物 (融点 153~154°C) として得られた。

¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.78 (s, 1H); 8.38 (s, 1H); 3.46 (m, 1H); 2.95 (s, 3H); 2.84 (s, m, 4H); 1.93 (m, 1H); 0.85 (m, 6H))

実施例 3

5-クロロ-7-メチルイソブチルアミノ-6-(3,5-ジメチル

ー1ーピラゾリル)ー1, 2, 4ートリアゾロ[1, 5a]ピリミジンの製造 (化合物No. A-99)

50 ml 容量の4つ口フラスコ中に、クロロホルムの20 ml に5, 7ージクロロー6ー(3, 5ージメチルー1ーピラゾリル)ー1, 2, 4ートリアゾロ[1, 5a]ピリミジン1.7 g (6 mmol) を溶解して加え、これにトリエチルアミン0.8 g (8 mmol) およびメチルイソブチルアミン0.5 g (6 mmol) を溶解したクロロホルム5 ml を滴下し、室温下30分間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(展開溶媒; トルエン: アセトン=20:1)にて精製し、標記化合物の5ークロロー7ーメチルイソブチルアミノー6ー(3, 5ージメチルー1ーピラゾリル)ー1, 2, 4ートリアゾロ[1, 5a]ピリミジン1.7 g (収率84%) が白色結晶物(融点136~137℃)として得られた。

MS (M+1 334): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.35 (s, 1H); 6.05 (s, 1H); 3.39 (m, 1H) 3.08 (m, 1H); 2.96 (s, 3H); 2.30 (s, 3H) 2.15 (s, 3H) 1.94 (m, 1H); 0.87 (m, 6H))

実施例4

5ーメチルチオー7ーメチルイソブチルアミノー6ー(3, 5ージメチルー1ーピラゾリル)ー1, 2, 4ートリアゾロ[1, 5a]ピリミジンの製造 (化合物No. A-102)

50 ml 容量の4つ口フラスコ中に、ジメチルスルホキシドの20 ml に5ークロロー7ーメチルイソブチルアミノー6ー(3, 5ージメチルー1ーピラゾリル)ー1, 2, 4ートリアゾロ[1, 5a]ピリミジン1.7 g (5 mmol) を溶解して加え、15%メチルメルカプタンナトリウム水溶液2.3 g (5 mmol) を滴下し、室温下1時間攪拌した。反応終了後、反応混合物にクロロホルム30 ml を加え水で2回

洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；トルエン：アセトン＝30：1）にて精製し、標記化合物の5-メチルチオ-7-メチルイソブチルアミノ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン1.5g（収率85%）が白色結晶物（融点146～148℃）として得られた。

MS (M+ 345): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.25 (s, 1H); 6.04 (s, 1H); 3.19 (m, 1H) 2.94 (s, m, 4H); 2.53 (s, 3H); 2.31 (s, 3H) 2.12 (s, 3H) 1.91 (m, 1H); 0.82 (m, 6H))

一般式 (B) で表される化合物の製造方法 (実施例 5～11)

実施例 5

5-クロロ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジンの製造（化合物No. B-19）

50ml容量の4つ口フラスコ中に、クロロホルムの20mlに5,7-ジクロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン2g（6mmol）を溶解して加え、これにトリエチルアミン0.8g（8mmol）および4-ピペコリン0.6g（6mmol）を溶解したクロロホルム5mlを滴下し、室温下30分間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；トルエン：アセトン＝20：1）にて精製し、標記化合物5-クロロ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン2.3g（収率95%）が白色結晶物（融点176～178℃）として得られた。

MS (M+ 402): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.35 (s, 1

H); 6.85 (s, 1H); 4.10 (m, 1H); 3.54 (m, 1H); 3.03 (m, 1H); 2.89 (m, 1H); 1.74–1.27 (m, 5H); 0.99 (d, 3H))

実施例 6

5-クロロ-7-(4-エトキシカルボニル-1-ピペリジル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジンの製造 (化合物No. B-28)

50ml容量の4つ口フラスコ中に、クロロホルムの20mlに5,7-ジクロロ-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン1.7g(5mmol)を溶解して加え、これにトリエチルアミン0.65g(6.5mmol)および4-エトキシカルボニルピペリジン0.8g(5mmol)を溶解したクロロホルム5mlを滴下し、室温下1時間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(展開溶媒; トルエン: アセトン=20:1)にて精製し、標記化合物5-クロロ-7-(4-エトキシカルボニルピペリジ-1-イル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン2.0g(収率87%)が白色結晶物(融点156~157℃)として得られた。

MS (M+1 461): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.37 (s, 1H); 6.86 (s, 1H); 4.16 (q, 2H); 4.02 (m, 1H); 3.55 (m, 1H); 3.16–3.03 (m, 2H); 2.55 (m, 1H); 2.05–1.78 (m, 4H); 1.27 (t, 3H))

実施例 7

5-クロロ-7-(3,5ジメチル-1-ピラゾリル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]

ピリミジンの製造 (化合物No. B-38)

50 ml 容量の4つ口フラスコ中に、ジメチルホルムアミドの20 ml に3, 5-ジメチルピラゾール0.57 g (6 mmol) を溶解して加え、水冷下60%油状水素化ナトリウム0.24 g (6 mmol) を15分間で添加し、1時間室温で攪拌した。次いで、5, 7-ジクロロ-6-(2, 5-ジクロロ-3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン2 g (6 mmol) を加え、室温下3時間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水中に入れトルエンで抽出し、トルエン層を飽和食塩水で3回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(展開溶媒; トルエン: アセトン=30:1)にて精製し、標記化合物5-クロロ-7-(3, 5ジメチル-1-ピラゾリル)-6-(2, 5-ジクロロ-3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン1.4 g (収率58%) が白色結晶物(融点193~194℃)として得られた。

MS (M+ 399): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.54 (s, 1H); 6.85 (s, 1H); 6.05 (s, 1H); 2.21 (s, 3H); 2.17 (s, 3H))

実施例 8

5-クロロ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジンの製造 (化合物No. B-68)

50 ml 容量の4つ口フラスコ中に、クロロホルムの20 ml に5, 7-ジクロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン1.9 g (6 mmol) を溶解して加え、これにトリエチルアミン0.8 g (8 mmol) および4-ピペコリン0.6 g (6 mmol) を溶解したクロロホルム5 ml を滴下し、室温下30分間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水で2

回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；トルエン：アセトン＝30：1）にて精製し、標記化合物5-クロロ-7-（4-メチル-1-ピペリジル）-6-（2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル）-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン2g（収率88%）が白色結晶物（融点200～201℃）として得られた。

MS (M+ 378): $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ 8.78 (s, 1H); 8.39 (s, 1H); 3.86 (m, 1H); 3.72 (m, 1H); 2.83–2.70 (m, 5H); 1.68–1.51 (m, 3H); 1.40–1.23 (m, 2H); 0.96 (d, 3H))

実施例9

5-クロロ-7-（4-メチル-1-ピペリジル）-6-（3,5-ジメチル-1-ピラゾリル）-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジンの製造（化合物No. B-127）

50ml容量の4つ口フラスコ中に、クロロホルムの20mlに5,7-ジクロロ-6-（3,5-ジメチル-1-ピラゾリル）-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン1.7g（6mmol）を溶解して加え、これにトリエチルアミン0.8g（8mmol）および4-ピペコリン0.6g（6mmol）を溶解したクロロホルム5mlを滴下し、室温下30分間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；トルエン：アセトン＝30：1）にて精製し、標記化合物5-クロロ-7-（4-メチル-1-ピペリジル）-6-（3,5-ジメチル-1-ピラゾリル）-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン1.9g（収率92%）が白色結晶物（融点138～140℃）として得られた。

MS (M+ 345): $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ 8.37 (s, 1H); 6.05 (s, 1H); 4.01 (m, 1H); 3.84 (m, 1

H); 2.92-2.74 (m, 2H); 2.31 (s, 3H); 2.13 (s, 3H); 1.71-1.55 (m, 3H); 1.40-1.26 (m, 2H); 0.96 (d, 3H))

実施例 10

5-メトキシ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジンの製造 (化合物No. B-34)

50ml 容量の4つ口フラスコ中に、テトラヒドロフランの10ml に5-クロロ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン1g (2.5mmol) を溶解して加え、28%ナトリウムメトキシドメタノール溶液0.5g (2.5mmol) を滴下し、室温下1時間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水中に入れトルエンで抽出し、トルエン層を飽和食塩水で3回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー (展開溶媒; トルエン:アセトン=20:1) にて精製し、標記化合物5-メトキシ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(2,5-ジクロロ-3-チエニル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジン0.85g (収率85%) が白色結晶物 (融点201~203℃) として得られた。

MS (M+1 398): ¹H-NMR (CDCl₃, δ) 8.26 (s, 1H); 6.78 (s, 1H); 4.04 (m, 4H) 3.40 (m, 1H); 3.04 (m, 1H); 2.85 (m, 1H); 1.72-1.22 (m, 5H); 0.98 (d, 3H))

実施例 11

5-メチルチオ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5a]ピリミジンの製造 (化合物No. B-130)

50 ml 容量の4つ口フラスコ中に、ジメチルスルホキシドの20 ml に5-クロロ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン1.2 g (3.5 mmol)を溶解して加え、15%メチルメルカプタンナトリウム水溶液1.6 g (3.5 mmol)を滴下し、室温下1時間攪拌した。反応終了後、反応混合物にクロロホルム加え水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(展開溶媒;トルエン:アセトン=30:1)にて精製し、標記化合物5-メチルチオ-7-(4-メチル-1-ピペリジル)-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン1.0 g (収率81%)が白色結晶物(融点158~159℃)として得られた。

MS (M+ 358): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.27 (s, 1H); 6.04 (s, 1H); 3.90-3.78 (m, 2H); 2.80-2.67 (m, 2H); 2.53 (s, 3H); 2.32 (s, 3H); 2.10 (s, 3H); 1.66-1.26 (m, 5H); 0.95 (d, 3H))

一般式 (C) で表される化合物の製造方法 (実施例 12~13)

実施例 12

5-クロロ-7-シクロヘキシル-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジンの製造 (化合物 No. C-1)

50 ml 容量の4つ口フラスコ中に、テトラヒドロフランの20 ml に5,7-ジクロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン1.7 g (6 mmol)を溶解したものおよび塩化ビスジフェニルフォスフィノプロピルパラジウム [PdCl₂ (dppp)] 35 mg (0.06 mmol)を

加えて 60℃まで加温した。これに臭化シクロヘキシルマグネシウムの 18%テトラヒドロフラン溶液 6 ml (6 mmol) を 1 分間で滴下し、60℃で 1 時間攪拌した。

反応終了後、反応混合物を水中に入れてトルエンで抽出し、トルエン層を飽和食塩水で 2 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に有機溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；ヘキサン：アセトン＝10：1）にて精製し、標記化合物 5-クロロ-7-シクロヘキシル-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン 0.8 g（収率 40%）が白色結晶物（融点 mp 204～205℃）として得られた。

MS (M+ 330)

実施例 13

5-クロロ-7-ベンジル-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジンの製造（化合物 No. C-11）

50 ml 容量の 4 つ口フラスコ中に、テトラヒドロフランの 20 ml に 5,7-ジクロロ-6-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1,2,4-トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン 1.7 g (6 mmol) 溶解したものおよび塩化ビスジフェニルフォスフィノプロピルパラジウム [PdCl₂(dppp)] 35 mg (0.06 mmol) を加えて 60℃まで加温した。これに塩化ベンジルマグネシウムの 17%テトラヒドロフラン溶液 6 ml (6 mmol) を 3 分間で滴下し、60℃で 1 時間攪拌した。

反応終了後、反応混合物を水中に入れてトルエンで抽出し、トルエン層を飽和食塩水で 2 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に有機溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；ヘキサン：アセトン＝10：1）にて精製し、標記化合物

物 5-クロロ-7-シクロヘキシル-6-(3, 5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン 0.8 g (収率 40%) が白色結晶物 (融点 mp 60~61°C) として得られた。

MS (M+ 338)

参考製造例

一般式 (1) で表される化合物の製造方法 (参考製造例 1~3)

参考製造例 1

5, 7-ジクロロ-6-(2, 5-ジクロロ-3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジンの製造 (化合物 No. 3)

(1) 3-チエニルマロン酸ジエチルエステルの合成

500 ml 容量の 4 つ口フラスコ中に、ジメチルホルムアミドの 300 ml に 3-チエニル酢酸 30 g (0.21 mol) および炭酸ジエチル 50 g (0.42 mol) を溶解して加え、これに 60% 油状水素化ナトリウム 8.5 g (0.21 mol) を一気に加えて、室温下 4 時間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水中に入れトルエンで抽出し、トルエン層を飽和食塩水で 3 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィ (展開溶媒; ヘキサン: アセトン = 20:1) にて精製し、3-チエニルマロン酸ジエチルエステルを 47 g (収率 92%) が黄色油状物として得られた。

MS (M+ 243)

(2) 5, 7-ジヒドロキシ-6-(3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジンの合成

100 ml 容量の 4 つ口フラスコ中の 1-ブタノール 50 ml に粉末

状ナトリウムエトキサイド 2.8 g (41 mmol)、3-アミノ-1, 2, 4-トリアゾール 4 g (41 mmol) および 3-チエニルマロン酸ジエチルエステル 10 g (41 mmol) を加えて、加熱還流下 6 時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷却し析出結晶を濾取した。ナトリウム塩として得られた結晶に 10% 塩酸を加えて、析出した白色結晶を濾取し乾燥させて 5, 7-ジヒドロキシー-6-(3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン 7 g (収率 73%) を得た。

MS (M+ 234)

(3) 5, 7-ジクロロ-6-(3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン (化合物 No. 2) の合成

50 ml 容量の 4 つ口フラスコ中に、5, 7-ジヒドロキシー-6-(3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン 7 g (30 mmol) およびオキシ塩化リン 30 ml を加えて、加熱還流下 3 時間攪拌した。反応終了後、オキシ塩化リンを減圧下留去した。得られた残渣にトルエンを加えて抽出し、トルエン層を飽和食塩水で 3 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー (展開溶媒; トルエン: アセトン = 20:1) にて精製し、5, 7-ジクロロ-6-(3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン 6.6 g (収率 80%) が白色結晶物として得られた。

MS (M+ 270): $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , δ 8.56 (s, 1 H); 7.54 (m, 2 H); 7.18 (m, 1 H))

(4) 5, 7-ジクロロ-6-(2, 5-ジクロロ-3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジンの合成

100 ml 容量の 4 つ口フラスコ中に、クロロホルム 10 ml、四塩化炭素 40 ml、5, 7-ジクロロ-6-(3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン 6 g (22 mmol), 塩化スルフルル 9 g (66 mmol) および触媒量のピリジンを加えて、加熱

還流下 4 時間攪拌した。反応終了後、反応層を飽和食塩水で 1 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をイソプロピルエーテルで洗浄し、標記化合物 5, 7-ジクロロ-6-(2, 5-ジクロロ-3-チエニル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5 a]ピリミジン 7 g (収率 93%) が白色結晶物 (融点 165 ~ 170 °C) として得られた。

MS (M+1 341): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.60 (s, 1H); 6.84 (s, 1H))

参考製造例 2

5, 7-ジクロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5 a]ピリミジンの製造 (化合物 No. 9)

(1) 2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジルマロン酸ジエチルエステルの合成

300 ml 容量の 4 つ口フラスコ中に、ジメチルホルムアミド 100 ml を入れ、この中に 60% 油性状水素化ナトリウム 3 g (69 mmol) を加えた。これに氷冷下マロン酸ジエチル 11 g (69 mmol) を 10 分間で滴下し、滴下後冷却を除き室温下 20 分間攪拌した。次いで 4, 5-ジクロロ-2-メチルピリミジン 11 g (69 mmol) を 30 分間かけて添加し室温下 15 時間攪拌した。反応終了後、反応混合物を水中に入れトルエンで抽出し、トルエン層を飽和食塩水で 3 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー (展開溶媒; ヘキサン: 酢酸エチル = 5 : 1) にて精製し、2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジルマロン酸ジエチルエステル 16 g (収率 81%) が黄色油状物として得られた。

MS (M+1 287)

(2) 5, 7-ジクロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミ

ジル) - 1, 2, 4-トリアゾロ [1, 5 a] ピリミジンの合成

リーンシュタック管を付けた 50 ml 容量の 4 つ口フラスコに、2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジルマロン酸ジエチルエステル 6 g (20 mmol), 3-アミノ-1, 2, 4-トリアゾール 1.8 g (20 mmol) およびトリ-n-プロピルアミン 5.8 g (40 mmol) を加え、反応中に生成するエタノールを留去させながら 140°C で 5 時間攪拌した。反応終了後、室温まで温度を下げてからヘキサンにて反応層内を 3 回洗浄し、これにオキシ塩化リン 21 g (140 mmol) を加えて更に加熱還流下 3 時間攪拌した。反応終了後、オキシ塩化リンを減圧下留去し得られた残渣にトルエンおよび水を加えて炭酸ナトリウムで水槽を中和してトルエン抽出した。トルエン層を飽和食塩水で 2 回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー (展開溶媒; トルエン: アセトン = 30 : 1) にて精製し、標記化合物 5, 7-ジクロロ-6-(2-メチル-5-クロロ-4-ピリミジル)-1, 2, 4-トリアゾロ [1, 5 a] ピリミジン 2.5 g (収率 40%) が黄色結晶 (融点 165 ~ 169°C) として得られた。

MS (M+ 315): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.88 (s, 1H); 8.64 (s, 1H); 2.83 (s, 3H))

参考実施例 3

5, 7-ジクロロ-6-(3, 5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1, 2, 4-トリアゾロ [1, 5 a] ピリミジンの製造 (化合物 No. 6)

(1) 3, 5-ジメチル-1-ピラゾリルマロン酸ジエチルの合成

500 ml 容量の 4 つ口フラスコ中に、テトラヒドロフランの 200 ml に 3, 5-ジメチルピラゾール 15 g (0.16 mol) を溶解して加え、水冷下 60% 油状水素化ナトリウム 6.3 g (0.16 mol) を 15 分間で添加し、1 時間室温で攪拌した。次いで、プロモマロン酸ジエチルエステル 38 g (0.16 mol) を 10 分間で滴下し、室温

下1日放置した。反応終了後、反応混合物を水中に入れ、トルエンで抽出しトルエン-テトラヒドロフラン混合有機層を飽和食塩水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；トルエン：アセトン＝20：1）にて精製し、3, 5-ジメチル-1-ピラゾリルマロン酸ジエチル 23 g（収率58%）が薄黄色油状物として得られた。

MS (M+ 254)

(2) 5, 7-ジクロロ-6-(3, 5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジンの合成

リーンシュタック管を付けた100ml容量の4つ口フラスコに、3, 5-ジメチル-1-ピラゾリルマロン酸ジエチルエステル 23 g (91 mmol), 3-アミノ-1, 2, 4-トリアゾール 7.6 g (91 mmol) およびトリ-n-プロピルアミン 26 g (182 mmol) を加え、反応中に生成するEtOHを留去させながら140℃で5時間攪拌した。反応終了後、室温まで温度を下げてからヘキサンにて反応層内を3回洗浄し、これにオキシ塩化リン 70 g (453 mmol) を加えて更に加熱還流下3時間攪拌した。反応終了後、オキシ塩化リンを減圧下留去し得られた残渣にトルエンおよび水を加えて炭酸ナトリウムで水槽を中和してトルエン抽出した。トルエン層を飽和食塩水で2回洗浄した後に無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下に溶媒を留去し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィー（展開溶媒；トルエン：アセトン＝20：1）にて精製し、標記化合物 5, 7-ジクロロ-6-(3, 5-ジメチル-1-ピラゾリル)-1, 2, 4-トリアゾロ[1, 5a]ピリミジン 12 g（収率45%）が黄色結晶（融点156～160℃）として得られた。

MS (M+ 282): ¹H-NMR (CDCl₃, δ 8.64 (s, 1H); 6.13 (s, 1H); 2.33 (s, 3H); 2.17 (s, 3H))

実施例 1 4 ～ 2 8（製剤化実施例）

本発明に係る化合物(一般式 (A)、(B) または (C) で表される化合物)を農園芸用殺菌剤として製剤化する製剤化例(実施例 1 4 ～ 2 8)を以下に記載した。

粉剤（実施例 1 4 ～ 1 6）

実施例 1 4

化合物 No. A-11 の化合物 2 部、PAP（物理性改良剤）1 部およびクレー 9 7 部を均一に粉碎混合して、活性成分を 2 %含有する粉剤を得る。

化合物 No. A-11 に代えて、表 1 ～表 1 0 に記載の化合物を用いて同様に粉剤を得ることができる。

実施例 1 5

化合物 No. B-19 の化合物 2 部、PAP（物理性改良剤）1 部およびクレー 9 7 部を均一に粉碎混合して、活性成分を 2 %含有する粉剤を得る。

化合物 No. B-19 に代えて、表 1 1 ～表 2 2 に記載の化合物を用いて同様に粉剤を得ることができる。

実施例 1 6

化合物 No. C-11 の化合物 2 部、PAP（物理性改良剤）1 部およびクレー 9 7 部を均一に粉碎混合して、活性成分を 2 %含有する粉剤を得る。

化合物 No. C-11 に代えて、表 2 3 ～表 2 5 に記載の化合物を用いて同様に粉剤を得ることができる。

水和剤（実施例 1 7 ～ 1 9）

実施例 1 7

化合物N o. A-64の化合物20部、アルキルベンゼンスルホン酸カリウム3部、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル5部および白土72部を均一に混合し、粉碎して活性成分を20%含有する水和剤を得る。

化合物N o. A-64に代えて、表1～表10に記載の化合物を用いて同様に水和剤を得ることができる。

実施例18

化合物N o. B-127の化合物20部、アルキルベンゼンスルホン酸カリウム3部、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル5部および白土72部を均一に混合し、粉碎して活性成分を20%含有する水和剤を得る。

化合物N o. B-127に代えて、表11～表22に記載の化合物を用いて同様に水和剤を得ることができる。

実施例19

化合物N o. C-1の化合物20部、アルキルベンゼンスルホン酸カリウム3部、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル5部および白土72部を均一に混合し、粉碎して活性成分を20%含有する水和剤を得る。

化合物N o. C-1に代えて、表23～表25に記載の化合物を用いて同様に水和剤を得ることができる。

乳剤（実施例20～22）

実施例20

化合物N o. A-11の化合物30部、メチルエチルケトン40部およびポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル30部を混合して溶解すれば、活性成分を30%含有する乳剤を得る。

化合物N o. A-11に代えて、表1～表10に記載の化合物を用いて同様に乳剤を得ることができる。

実施例21

化合物No. B-68の化合物30部、メチルエチルケトン40部およびポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル30部を混合して溶解すれば、活性成分を30%含有する乳剤を得る。

化合物No. B-68に代えて、表11～表22に記載の化合物を用いて同様に乳剤を得ることができる。

実施例22

化合物No. C-1の化合物30部、メチルエチルケトン40部およびポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル30部を混合して溶解すれば、活性成分を30%含有する乳剤を得る。

化合物No. C-1に代えて、表23～表25に記載の化合物を用いて同様に乳剤を得ることができる。

ゾル剤（実施例23～25）

実施例23

化合物No. A-99の化合物40部、ラウリルサルフェート2部、アルキルナフタレンスルホン酸ソーダ2部、アセトキシプロピルセルロース1部および水55部を均一に混合して、活性成分を40%含有するゾル剤を得る。

化合物No. A-99に代えて、表1～表10に記載の化合物を用いて同様にゾル剤を得ることができる。

実施例24

化合物No. B-127の化合物40部、ラウリルサルフェート2部、アルキルナフタレンスルホン酸ソーダ2部、アセトキシプロピルセルロース1部および水55部を均一に混合して、活性成分を40%含有するゾル剤を得る。

化合物No. B-127に代えて、表11～表22に記載の化合物を用いて同様にゾル剤を得ることができる。

実施例25

化合物No. C-11の化合物40部、ラウリルサルフェート2部、

アルキルナフタレンスルホン酸ソーダ 2 部、アセトキシプロピルセルロース 1 部および水 55 部を均一に混合して、活性成分を 40% 含有するゾル剤を得る。

化合物 No. C-11 に代えて、表 23～表 25 に記載の化合物を用いて同様にゾル剤を得ることができる。

粒剤（実施例 26～28）

実施例 26

化合物 No. A-64 の化合物 10 部、ラウリルサルフェート 1 部、リグニンスルホン酸カルシウム 5 部、ベントナイト 30 部およびクレー 54 部に水 15 部を加えて混練機で混練した後、造粒機で造粒し、流動乾燥機で乾燥して、活性成分 10% を含む粒剤を得る。

化合物 No. A-64 に代えて、表 1～表 10 に記載の化合物を用いて同様に粒剤を得ることができる。

実施例 27

化合物 No. B-68 の化合物 10 部、ラウリルサルフェート 1 部、リグニンスルホン酸カルシウム 5 部、ベントナイト 30 部およびクレー 54 部に水 15 部を加えて混練機で混練した後、造粒機で造粒し、流動乾燥機で乾燥して、活性成分 10% を含む粒剤を得る。

化合物 No. B-68 に代えて、表 11～表 22 に記載の化合物を用いて同様に粒剤を得ることができる。

実施例 28

化合物 No. C-1 の化合物 10 部、ラウリルサルフェート 1 部、リグニンスルホン酸カルシウム 5 部、ベントナイト 30 部およびクレー 54 部に水 15 部を加えて混練機で混練した後、造粒機で造粒し、流動乾燥機で乾燥して、活性成分 10% を含む粒剤を得る。

化合物 No. C-1 に代えて、表 23～表 25 に記載の化合物を用いて同様に粒剤を得ることができる。

試験例

本発明に係る化合物の農園芸用殺菌剤の活性成分としての有用性、および本発明に係る農園芸用殺菌剤の有用性についての具体例を試験例 1～17 に示した。

イネいもち病防除効果試験（試験例 1～3）

試験例 1

温室内で直径 6 cm の大きさのプラスチックポットで栽培した水稻（品種：朝日）の 3 葉期苗に、実施例 17 に準じて調製した水和剤の所定濃度希釈液を 1 ポットあたり 10 ml 散布した。薬剤処理の翌日、あらかじめオートミール寒天培地上で形成させたイネいもち病菌（*Pyricularia oryzae*: ピリキュラリア オリゼ）の分生胞子を接種し、24℃の人工気象室内で発病管理した。病菌接種 5 日後に第 3 葉上のイネいもち病病斑数を調査し、次式により防除価（％）を算出した。そして、防除価（％）を下記の基準により評価値に換算した。

本試験は 1 薬液濃度区当り 3 ポット制で行った。また、下記の基準により水稻に対する薬害程度を調査した。その結果は表 35 のとおりである。

なお、防除効果の評価値および薬害程度の調査指数は、以下の試験例 2～15 においても同様である。

$$\text{防除価（％）} = \left(1 - \frac{\text{散布区の病斑数}}{\text{無散布区の病斑数}} \right) \times 100$$

防除効果の評価値	防 除 価
5	100%
4	80～100%未満
3	60～ 80%未満
2	40～ 60%未満
1	20～ 40%未満
0	20%未満

薬害程度の調査指数

5 : 激甚 4 : 甚 3 : 多 2 : 若干 1 : わずか 0 : なし

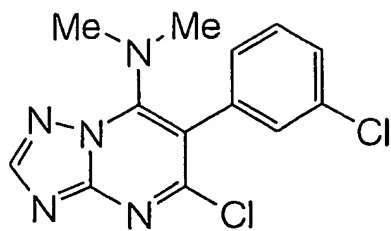
表 3 5

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
A-49	100	5	0
A-50	100	4	0
A-52	100	4	0
A-74	100	5	0
A-84	100	5	0
A-99	100	5	0
A-102	100	5	0
A-105	100	5	0
A-112	100	5	0
A-116	100	5	0
比較薬剤A	200	1	0
無散布区	—	0(27)	—

注1) 無散布区の()内の数値は、1葉当りのイネいもち病の平均病斑数を示す。

注2) 比較薬剤Aは、下記の比較薬剤Aであり、本発明化合物に代えて、同様に調製して使用した。後記の表においても同様である。

比較薬剤Aは、下記式で表される化合物であり、米国特許第5593996号明細書記載の化合物である。



比較薬剤 A

試験例 2

実施例 18 に準じて調製した水和剤について、試験例 1 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準により水稻に対する薬害を調査した。これらの結果は、表 36 のとおりである。

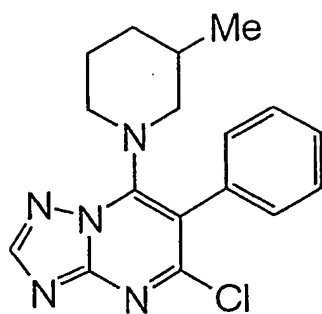
表 36

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
B-57	100	5	0
B-62	100	4	0
B-93	100	4	0
B-127	100	4	0
比較薬剤 B	200	1	0
無散布区	—	0 (26)	—

注 1) 無散布区の () 内の数値は、1 葉当りのイネいもち病の平均病斑数を示す。

注 2) 比較薬剤 B は、下記の比較薬剤 B であり、本発明化合物に代えて、同様に調製して使用した。後記の表においても同様である。

比較薬剤 B は、下記式で表される化合物であり、アメリカ特許第 5 5 9 3 9 9 6 号明細書記載の化合物である。



比較薬剤B

試験例 3

実施例 19 に準じて調製した水和剤について、試験例 1 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準により水稻に対する薬害を調査した。これらの結果は、表 37 のとおりである。

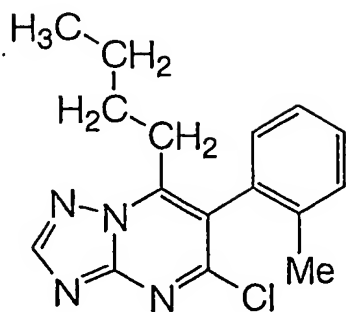
表 37

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
C-1	100	5	0
C-5	100	3	0
C-6	100	5	0
C-9	100	3	0
C-10	100	3	0
C-11	100	3	0
比較薬剤C	200	1	0
無散布区	—	0(27)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのイネいもち病の平均病斑数を示す。

注2) 比較薬剤Cは、下記の比較薬剤Cであり、本発明化合物に代えて、同様に調製して使用した。後記の表においても同様である。

比較薬剤Cは、下記式で表される化合物であり、国際公開特許WO 99/41255号公報記載の化合物である。



比較薬剤 C

オオムギうどんこ病防除効果試験（試験例 4～6）

試験例 4

温室内で直径 6 cm の大きさのプラスチックポットで栽培した大麦（品種：アズマゴールデン）の 1 葉期苗に、実施例 17 に準じて調製した水和剤の所定濃度希釈液を 1 ポットあたり 10 ml 散布した。薬剤処理翌日、あらかじめ大麦葉上で形成させたオオムギうどんこ病菌（*Erysiphe graminis*: エリシフェ グラミニス）の分生胞子を接種し、20℃の人工気象室内で発病管理した。接種 7 日後に第 1 葉上のオオムギうどんこ病の病斑面積歩合（％）を調査し、次式により防除価（％）を算出した。そして、試験例 1 と同様な方法で防除効果の評価値に換算した。

本試験は 1 薬液濃度区当り 3 ポット制で行った。また、大麦に対する薬害程度を試験例 1 と同じ基準で調査した。その結果は表 38 のとおりである。

$$\text{防除価（％）} = \left(1 - \frac{\text{散布区の病斑面積歩合}}{\text{無散布区の病斑面積歩合}} \right) \times 100$$

表 3 8

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
A-50	100	4	0
A-52	100	4	0
A-60	100	4	0
A-64	100	4	0
A-84	100	5	0
A-99	100	5	1
A-102	100	4	0
A-105	100	4	0
A-112	100	4	0
A-116	100	4	0
比較薬剤A	200	2	0
無散布区	—	0 (58.7)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのオオムギうどんこ病の平均病斑面積歩合 (%) を示す。

試験例 5

実施例 18 に準じて調製した水和剤について、試験例 4 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準により大麦に対する薬害を調査した。これらの結果は、表 39 のとおりである。

表 3 9

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
B-39	100	4	1
B-50	100	5	0
B-57	100	4	0
B-61	100	4	0
B-62	100	4	1
B-64	100	4	0
B-68	100	4	0
B-76	100	4	0
B-103	100	4	0
B-115	100	5	0
B-127	100	5	0
B-133	100	4	0
B-136	100	5	0
比較薬剤B	200	2	0
無散布区	—	0(54.5)	—

注1) 無散布区の()内の数値は、1葉当りのオオムギうどんこ病の平均病斑面積歩合(%)を示す。

試験例 6

実施例19に準じて調製した水和剤について、試験例4と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例1と同様の基準により大麦に対する薬害を調査した。これらの結果は、表40のとおりである。

表 4 0

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
C-1	100	5	0
C-5	100	3	0
C-6	100	3	0
C-9	100	3	0
C-10	100	3	0
C-11	100	3	0
比較薬剤C	200	1	0
無散布区	—	0(58.7)	—

注1) 無散布区の()内の数値は、1葉当りのオオムギうどんこ病の平均病斑面積歩合(%)を示す。

コムギ赤さび病防除効果試験（試験例 7 ～ 9）試験例 7

温室内で直径 6 c m の大きさのプラスチックポットで栽培した小麦（品種：農林 6 1 号）の 1 葉期苗に、実施例 1 7 に準じて調製した水和剤の所定濃度希釈液を 1 ポットあたり 1 0 m l 散布した。薬剤処理翌日、あらかじめ小麦葉上で形成させたコムギ赤さび病菌（*Puccinia recondita*：プクシニア レコンジタ）の夏胞子を接種し、2 0 °C の人工気象室内で発病管理した。接種 1 0 日後に第 1 葉上の病斑数を調査し、次式により防除価（％）を算出した。そして、試験例 1 と同様な方法で防除効果の評価値に換算した。

本試験は 1 葉液濃度区当り 3 ポット制で行った。また、小麦に対する薬害程度を試験例 1 と同じ基準で調査した。その結果は表 4 1 のとおりである。

$$\text{防除価（％）} = \left(1 - \frac{\text{散布区の病斑数}}{\text{無散布区の病斑数}} \right) \times 100$$

表 4 1

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
A-21	100	4	0
A-22	100	4	0
A-23	100	4	0
A-49	100	4	0
A-50	100	5	0
A-52	100	4	0
A-57	100	4	0
A-60	100	4	0
A-64	100	4	0
A-74	100	4	0
A-83	100	4	0
A-84	100	4	0
A-99	100	5	0
A-105	100	4	0
A-112	100	4	0
A-116	100	4	0
A-124	100	4	0
比較薬剤A	200	2	0
無散布区	—	0(44.2)	—

注1) 無散布区の()内の数値は、1葉当りのコムギ赤さび病の平均病斑数を示す。

試験例 8

実施例 1.8 に準じて調製した水和剤について、試験例 7 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準により小麦に対する薬害を調査した。これらの結果は、表 4 2 のとおりである。

表 4 2

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
B-19	100	4	0
B-24	100	4	0
B-39	100	4	0
B-43	100	4	0
B-50	100	4	0
B-57	100	5	0
B-60	100	4	0
B-61	100	4	0
B-63	100	4	0
B-64	100	4	0
B-66	100	4	0
B-68	100	4	0
B-72	100	4	0
B-76	100	4	0
B-93	100	4	0
B-97	100	4	0
B-102	100	4	0
B-103	100	4	0
B-115	100	4	0
B-127	100	4	0
B-133	100	4	0
B-141	100	4	0
B-147	100	4	0
比較薬剤B	200	2	0
無散布区	—	0 (45.3)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのコムギ赤さび病の平均病斑数を示す。

試験例 9

実施例 19 に準じて調製した水和剤について、試験例 7 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準により小麦に対する薬害を調査した。これらの結果は、表 4 3 のとおりである。

表 4 3

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
C-1	100	5	0
C-5	100	4	0
C-6	100	5	0
C-9	100	3	0
C-10	100	3	0
C-11	100	4	0
比較薬剤 C	200	0	0
無散布区	—	0 (44.2)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1 葉当りのコムギ赤さび病の平均病斑数を示す。

キュウリべと病防除効果試験 (試験例 10 ~ 12)

試験例 10

温室内で直径 6 cm の大きさのプラスチックポットで栽培したきゅうり (品種: 相模半白) の 2 葉期苗に、実施例 17 に準じて調製した水和剤の所定濃度希釈液を 1 ポットあたり 10 ml 散布した。薬剤処理の翌日、あらかじめきゅうり葉上で形成させたキュウリべと病菌 (*Pseudoperonospora cubensis*: シュードヘロノスポラ クベンシス) の胞子を接種し、20℃の人工気象室内で発病管理した。接種 6 日後に病斑面積歩合 (%) を調査し、次式により防除価 (%) を算出した。そして、試験例 1 と同様な方法により評価値に換算した。

本試験は 1 薬液濃度区当り 3 ポット制で行った。また、試験例 1 と同一の基準によりきゅうりに対する薬害程度を調査した。その結果は表 4 4 のとおりである。

$$\text{防除価 (\%)} = \left(1 - \frac{\text{散布区の病斑面積歩合}}{\text{無散布区の病斑面積歩合}} \right) \times 100$$

表 4 4

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
A-49	100	4	0
A-116	100	4	0
比較薬剤A	200	1	0
無散布区	—	0(46.3)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのキュウリべと病の平均病斑面積歩合(%)を示す。

試験例 1 1

実施例 1 8 に準じて調製した水和剤について、試験例 1 0 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準によりきゅうりに対する薬害を調査した。これらの結果は、表 4 5 のとおりである。

表 4 5

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
B-8	100	5	0
B-11	100	4	0
B-16	100	5	0
B-24	100	4	0
B-28	100	4	0
B-57	100	5	0
B-61	100	5	0
B-63	100	5	0
B-64	100	5	0
B-68	100	4	0
B-76	100	4	0
B-93	100	4	0
B-103	100	4	0
B-124	100	4	0
B-127	100	5	0
B-133	100	4	0
B-138	100	4	0
B-147	100	4	0
比較薬剤B	200	1	0
無散布区	—	0(47.3)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのキュウリべと病の平均病斑面積歩合(%)を示す。

試験例 1 2

実施例 1 9 に準じて調製した水和剤について、試験例 1 0 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準によりきゅうりに対する薬害を調査した。これらの結果は、表 4 6 のとおりである。

表 4 6

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
C-1	100	5	0
C-5	100	3	0
C-6	100	3	0
C-9	100	3	0
C-10	100	3	0
C-11	100	3	0
比較薬剤 C	200	1	0
無散布区	—	0 (46.3)	—

注 1) 無散布区の () 内の数値は、1 葉当りのキュウリべと病の平均病斑面積歩合 (%) を示す。

キュウリ灰色かび病防除効果試験 (試験例 1 3 ~ 1 5)試験例 1 3

温室内で直径 6 c m の大きさのプラスチックポットで栽培したきゅうり (品種: 相模半白) の 1 . 5 葉期苗に、実施例 1 7 に準じて調製した水和剤の所定濃度希釈液を 1 ポットあたり 1 0 m l 散布した。薬剤処理の翌日、あらかじめジャガイモ煎汁培地上で培養したキュウリ灰色かび病菌 (*Botrytis cinerea*: ボトリチス シネレア) の含菌寒天片を接種し、2 0 °C の湿室内に入れた。接種 4 日後に病斑直径 (c m) を測定し、次式により防除価 (%) を算出した。そして、試験例 1 と同様な方法で評価値に換算した。

本試験は 1 薬液濃度区当り 3 ポット制で行った。また、試験例 1 と同一の基準によりきゅうりに対する薬害程度を調査した。その結果は表 4 7 のとおりである。

$$\text{防除価 (\%)} = \left(1 - \frac{\text{散布区の病斑直径}}{\text{無散布区の病斑直径}} \right) \times 100$$

表 4 7

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
A-2	100	5	0
A-22	100	4	0
A-50	100	4	0
A-52	100	5	0
A-64	100	4	0
A-74	100	4	0
A-84	100	5	0
A-99	100	4	0
A-118	100	5	0
比較薬剤A	200	2	0
無散布区	—	0 (6cm)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのキュウリ灰色かび病の平均病斑直径を示す。

試験例 1 4

実施例 1 8 に準じて調製した水和剤について、試験例 1 3 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準によりきゅうりに対する薬害を調査した。これらの結果は、表 4 8 のとおりである。

表 4 8

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
B-19	100	4	0
B-23	100	5	0
B-25	100	5	0
B-26	100	5	0
B-28	100	5	0
B-32	100	5	0
B-39	100	5	0
B-41	100	4	0
B-43	100	5	0
B-57	100	4	0
B-61	100	5	0
B-63	100	4	0
B-64	100	5	0
B-68	100	5	0
B-93	100	4	0
B-103	100	5	0
B-115	100	5	0
B-127	100	4	0
B-138	100	5	0
比較薬剤B	200	2	0
無散布区	—	0(6cm)	—

注1) 無散布区の()内の数値は、1葉当りのキュウリ灰色かび病の平均病斑直径を示す。

試験例 1 5

実施例 1 9 に準じて調製した水和剤について、試験例 1 3 と同様の方法により、防除価を算出し、該防除価を同様の基準により評価値に換算した。また、試験例 1 と同様の基準によりきゅうりに対する薬害を調査した。これらの結果は、表 4 9 のとおりである。

表 4 9

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 の評価値	薬 害
C-1	100	5	0
C-5	100	3	0
C-6	100	3	0
C-9	100	3	0
C-10	100	3	0
C-11	100	3	0
比較薬剤C	200	0	0
無散布区	—	0 (6cm)	—

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのキュウリ灰色かび病の平均病斑直径を示す。

キュウリ灰色かび病防除効果試験 (治療効果) (試験例 16 ~ 17)

試験例 16

温室内で直径 6 cm の大きさのプラスチックポットで栽培したきゅうり (品種: 相模半白) の 1.5 葉期苗の第 1 葉上に、あらかじめジャガイモ煎汁培地上で培養したキュウリ灰色かび病菌 (*Botrytis cinerea*: ボトリチス シネレア) の含菌寒天片を接種し、20℃の温室内に 1 日間保持した。接種 1 日後、実施例 17 に準じて調製した水和剤の所定濃度希釈液を 1 ポットあたり 10 ml 散布した。散布後は、再び 20℃の温室内に入れた。散布 4 日後に、病斑直径 (cm) を測定し、次式により防除価 (%) を算出した。

本試験は 1 薬液濃度区当り 3 ポット制で行った。その結果は表 50 のとおりである。

$$\text{防除価 (\%)} = \left(1 - \frac{\text{散布区の病斑直径}}{\text{無散布区の病斑直径}} \right) \times 100$$

表 5 0

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除値 (%)
A-84	200	70
	100	42
A-99	200	85
	100	77
比較薬剤A	200	14
	100	5
無散布区	—	0 (6cm)

注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのキュウリ灰色かび病の平均病斑直径を示す。

試験例 1 7

実施例 1 8 に準じて調製した水和剤について、試験例 1 6 と同様の方法により、防除価を算出した。これらの結果は、表 5 1 のとおりである。

表 5 1

供試化合物No.	散布薬液濃度 (ppm)	防除効果 (%)
B-103	200	72
	100	38
B-127	200	72
	100	48
比較薬剤B	200	16
無散布区	—	0 (5.5cm)

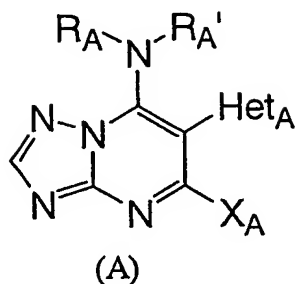
注1) 無散布区の () 内の数値は、1葉当りのキュウリ灰色かび病の平均病斑直径を示す。

産業上の利用の可能性

本発明に係る化合物を含む組成物は、上記したような農作物の重要病害、特にイネいもち病、オオムギうどんこ病、コムギ赤さび病、キュウリべと病、キュウリ灰色かび病などの種々の病害を効果的に防除することができる。従って、本発明に係る化合物は、農園芸用殺菌剤の活性成分として有用である。

請求の範囲

1. 一般式 (A)



[式中、

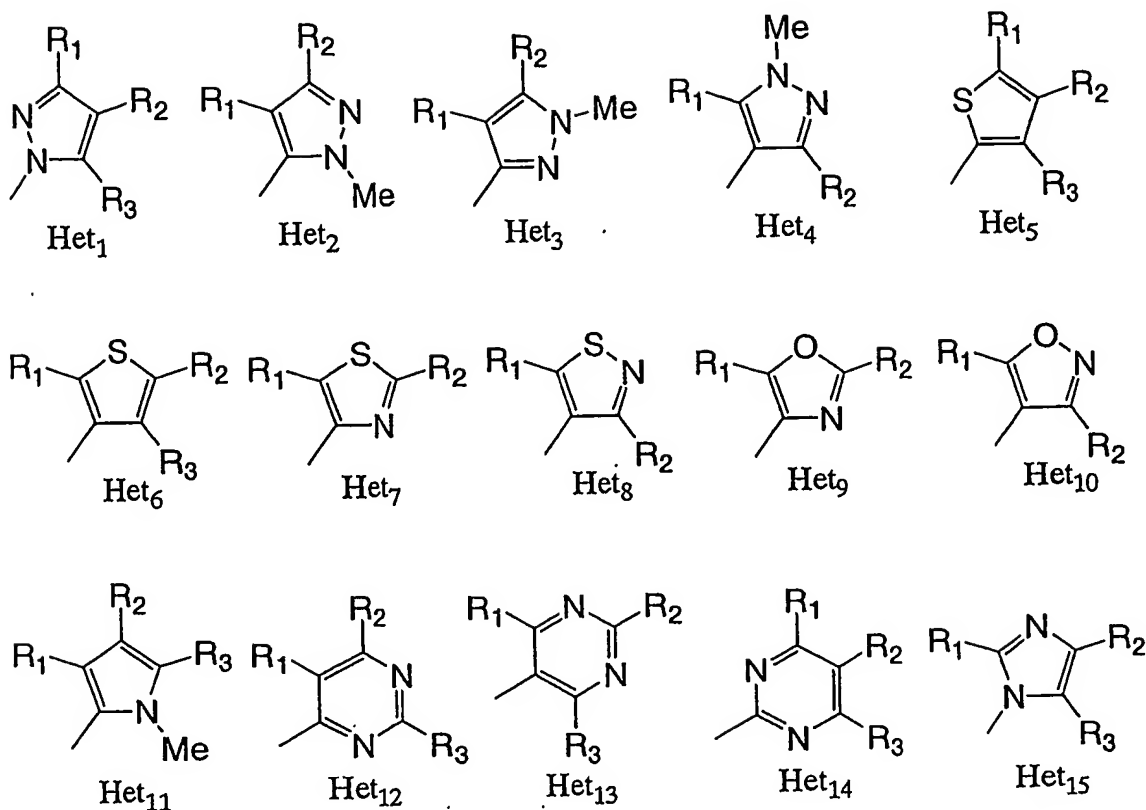
He t_Aは、ヘテロ元素を含む5員環または6員環を示し、これらの環はハロゲン原子、C 1～C 6アルキル基、C 1～C 6アルコキシ基、C 1～C 6ハロアルキル基またはC 2～C 6アルコキシアルキル基で置換されていてもよく、

X_Aは、ハロゲン原子、シアノ基、C 1～C 6アルコキシ基、C 1～C 6アルキルチオ基、C 1～C 6アルキルスルフィニル基、C 1～C 6アルキルスルホニル基、C 1～C 6アルキルアミノ基またはC 1～C 6アルコキシカルボニル基を示し、かつ

R_AおよびR_A'は、同一または互いに異なっている、C 1～C 10アルキル基、C 2～C 10アルケニル基、C 2～C 10アルキニル基またはフェニル基（当該アルキル基、アルケニル基、アルキニル基およびフェニル基は、ハロゲン原子、C 1～C 6アルキル基、C 1～C 6ハロアルキル基、C 1～C 6アルコキシ基、C 1～C 6アルキルチオ基、C 1～C 6アルコキシカルボニル基およびカルボキシ基からなる群から選ばれた1または複数の基で置換されていてもよい）を示す。]

で表されるトリアゾロピリミジン誘導体。

2. 前記He t_Aは、以下の一般式He t₁～He t₁₅で表される基



(ここで R₁、R₂ および R₃ は、同一または異なっている、水素原子、C 1 ~ C 6 アルキル基、C 1 ~ C 6 アルコキシ基、C 1 ~ C 6 ハロアルキル基、またはハロゲン原子を表す) のいずれかの基を示し、

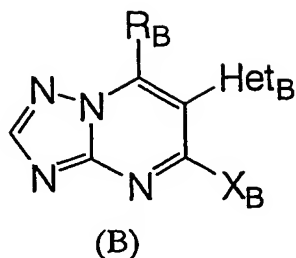
前記 X_A は、ハロゲン原子を示し、かつ

前記 R_A および R_A' は、同一または互いに異なっている、C 1 ~ C 10 アルキル基、C 2 ~ C 10 アルケニル基または C 2 ~ C 10 アルキニル基 (当該アルキル基、アルケニル基およびアルキニル基は、ハロゲン原子、C 1 ~ C 6 アルキル基または C 1 ~ C 6 ハロアルキル基で置換されていてもよい) を示す

ことを特徴とする、請求項 1 に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

3. 前記 Het_A は、前記 Het₁、Het₆ または Het₁₂ で表される基であることを特徴とする、請求項 2 に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

4. 一般式 (B)



[式中、

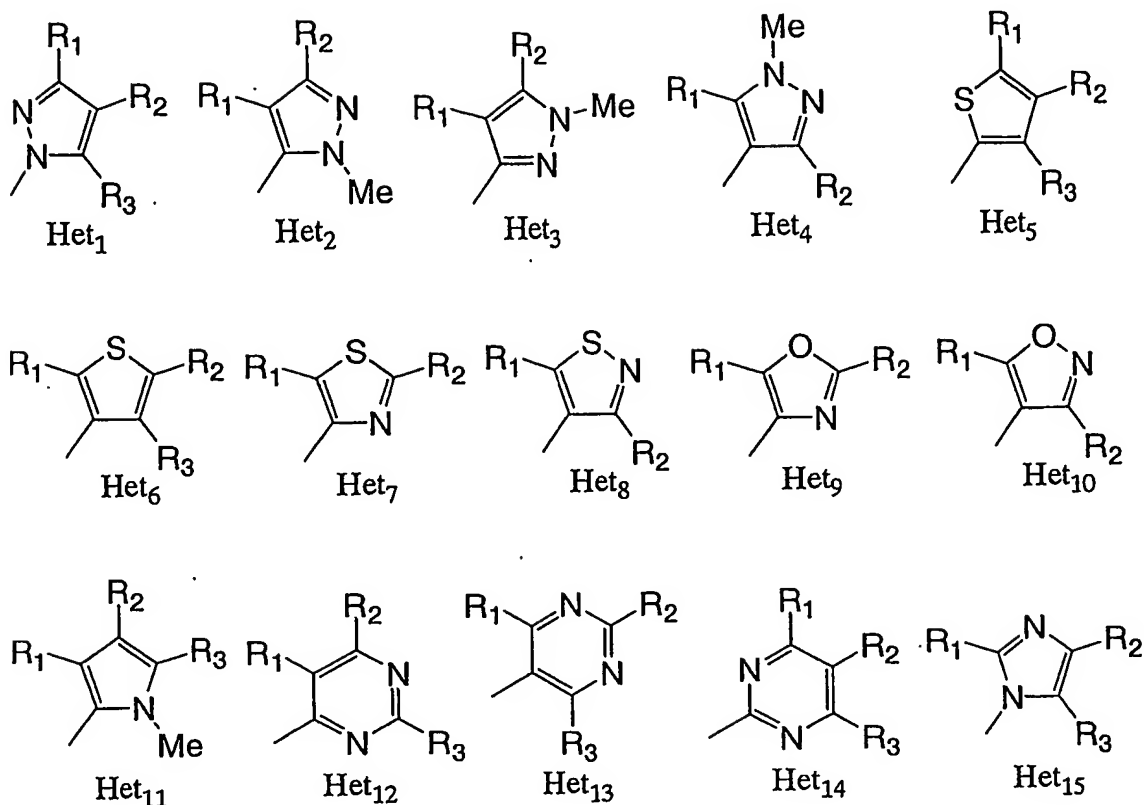
Het_B は、ヘテロ元素を含む5員環または6員環を示し、これらはハロゲン原子、C1～C6アルキル基、C1～C6アルコキシ基、C1～C6ハロアルキル基またはC2～C6アルコキシアルキル基で置換されていてもよく、

X_B は、ハロゲン原子、シアノ基、C1～C6アルコキシ基、C1～C6アルキルチオ基、C1～C6アルキルスルフィニル基、C1～C6アルキルスルホニル基、C1～C6アルキルアミノ基またはC1～C6アルコキシカルボニル基を示し、かつ

R_B は、窒素原子で結合している、置換されていてもよい含窒素複素環を示す。]

で表されるトリアゾロピリミジン誘導体。

5. 前記 Het_B は、以下の一般式 $Het_1 \sim Het_{15}$ で示される基

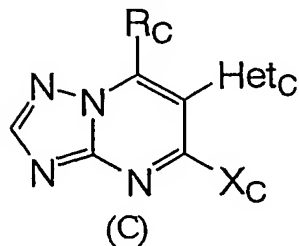


(ここで R₁、R₂ および R₃ は、同一または異なっているがよく、水素原子、C 1 ~ C 6 アルキル基、C 1 ~ C 6 アルコキシ基、C 1 ~ C 6 ハロアルキル基またはハロゲン原子を表す) のいずれかの基を示し、かつ前記 X_B は、ハロゲン原子を示す

ことを特徴とする、請求項 4 に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

6. 前記 Het_B は、前記 Het₁、Het₆ または Het₁₂ で表される基であることを特徴とする、請求項 5 に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

7. 一般式 (C)



[式中、

Het_C は、ヘテロ元素を含む 5 員環または 6 員環を示し、これらの

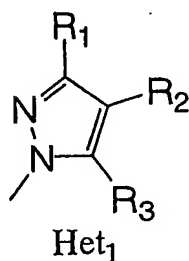
5員環または6員環はハロゲン原子、C1～C6アルキル基、C1～C6アルコキシ基、C1～C6ハロアルキル基およびC2～C6アルコキシアルキル基からなる群から選ばれた基によって置換されているもよく、

X_c は、ハロゲン原子、シアノ基、C1～C6アルコキシ基またはC1～C6アルキルチオ基を示し、かつ

R_c は、C1～C10アルキル基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C8シクロアルキル基、C4～C10シクロアルキルアルキル基またはアラルキル基を示し、当該アラルキル基のベンゼン環はハロゲン原子、C1～C6アルキル基、C1～C6アルコキシ基またはC1～C6アルキルチオ基により置換されているもよい。]

で表される、トリアゾロピリミジン誘導体。

8. 前記Het_cは下記の一般式Het₁



[式中、 R_1 、 R_2 および R_3 は、同一または異なっている、水素原子、ハロゲン原子、C1～C6アルキル基、C1～C6アルコキシ基またはC1～C6ハロアルキル基を示す]で表される基であることを特徴とする、請求項7に記載のトリアゾロピリミジン誘導体。

9. 請求項1～8のいずれか一項に記載のトリアゾロピリミジン誘導体を活性成分として含有することを特徴とする、農園芸用殺菌剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/09615

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C07D487/04, A01N43/90

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C07D487/04, A01N43/90

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAPLUS (STN), CAOLD (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	EP 613900 A1 (SHELL INTERNATIONALE RESEARCH MAATSCHAPPIJ B.V.), 07 September, 1994 (07.09.94), Full text & EP 613900 B1 & AU 9456332 A & AU 672267 B & ES 2101429 T3 & CA 2116946 A & BR 9400808 A & JP 07-002861 A & RU 2126408 C1 & CN 1094407 A & US 5756509 A	1-6, 9 7, 8
Y	WO 01/96341 A2 (BASF AG.), 20 December, 2001 (20.12.01), Full text & EP 1289995 A2 & US 2003/083328 A1	7, 8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 August, 2003 (19.08.03)

Date of mailing of the international search report
02 September, 2003 (02.09.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/09615

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 99/41255 A1 (American Cyanamid Co.), 19 August, 1999 (19.08.99), Full text & US 6020338 A & CA 2320304 A & AU 9925952 A & AU 750489 B & BR 9907863 A & EP 1054888 A1 & JP 2002-503664 A & NZ 506247 A & CN 1114606 B	7, 8
X	WO 02/02563 A2 (AMERICAN HOME PRODUCTS CORP.), 10 January, 2002 (10.01.02), Example 198 & BR 2001012038 A & EP 1307200 A2 & US 2002/68744 A1 & NO 2002006195 A	1
P, X	WO 03/39259 A1 (SYNGENTA LTD.), 15 May, 2003 (15.05.03), (Family: none)	1, 9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/09615

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Claims 1-3 relate to a compound represented by the general formula (A); claims 4-6 relate to a compound represented by the general formula (B); claims 7 and 8 relate to a compound represented by the general formula (C); and claim 9 relates to fungicides for agricultural and horticultural use containing the compounds as the active ingredient.

The matter common to claims 1-9 is a triazolopyrimidine skeleton having a heterocyclic substituent, but this skeleton is disclosed in documents (see EP 613900 A1, WO 02/02563 A2, and so on). Thus, the skeleton is not novel, being still a matter of prior art. The common matter is not a special technical (continued to extra sheet)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/09615

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

feature.

Further, there is no other common matter which is common to all of the claims and is considered as a special technical feature. Therefore, the number of inventions of this application is three.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C07D487/04, A01N43/90

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C07D487/04, A01N43/90

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
CAPLUS (STN), CAOLD (STN), REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP 613900 A1 (SHELL INTERNATIONALE RESEARCH MAATSCHAPPIJ B.V.) 199	1-6, 9
Y	4.09.07 全文参照 & EP 613900 B1 & AU 9456332 A & AU 672267 B & ES 2101429 T3 & CA 2116946 A & BR 9400808 A & JP 07-002861 A & RU 212 6408 C1 & CN 1094407 A & US 5756509 A	7, 8
Y	WO 01/96341 A2 (BASF Aktiengesellschaft) 2001.12.20 全文参照 & EP 12 89995 A2 & US 2003/083328 A1	7, 8
Y	WO 99/41255 A1 (American Cyanamid Company) 1999.08.19 全文参照 & U S 6020338 A & CA 2320304 A & AU 9925952 A & AU 750489 B & BR 99078	7, 8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

19.08.03

国際調査報告の発送日

02.09.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安藤 倫世



4P

9837

電話番号 03-3581-1101 内線 3492

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	63 A & EP 1054888 A1 & JP 2002-503664 A & NZ 506247 A & CN 1114606 B	
X	WO 02/02563 A2 (AMERICAN HOME PRODUCTS CORPORATION) 2002.01.10 example 198参照 & BR 2001012038 A & EP 1307200 A2 & US 2002/68744 A1 & NO 2002006195 A	1
PX	WO 03/39259 A1 (SYNGENTA LIMITED) 2003.05.15 (ファミリーなし)	1, 9

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-3は、一般式(A)で表される化合物に関するものであり、請求の範囲4-6は、一般式(B)で表される化合物に関するものであり、請求の範囲7, 8は、一般式(C)で表される化合物に関するものであり、請求の範囲9は、これらを活性成分とする農園芸用殺菌剤に関するものである。

請求の範囲1-9に共通の事項は、置換基として複素環を有するトリアゾロピリミジン骨格化合物であるが、これは文献に開示されており (EP 613900 A1、WO 02/02563 A2等参照)、新規ではないから、先行技術の域を出ず、この共通事項は特別な技術的特徴であるとは認められない。

また、請求の範囲全てに共通の事項であって、特別な技術的特徴と考えられる他の共通の事項は存在しないので、本出願に含まれる発明の数は3である。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。